

Frankfurt ^a in 1969

B. Maginnus

1969

2-Photonenspektroskopie

in

Alkalihalogeniden

Inaugural-Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades

der Naturwissenschaftlichen Fakultät der

JOHANN WOLFGANG GOETHE-UNIVERSITÄT

zu Frankfurt am Main

vorgelegt von

Bernd Staginnus

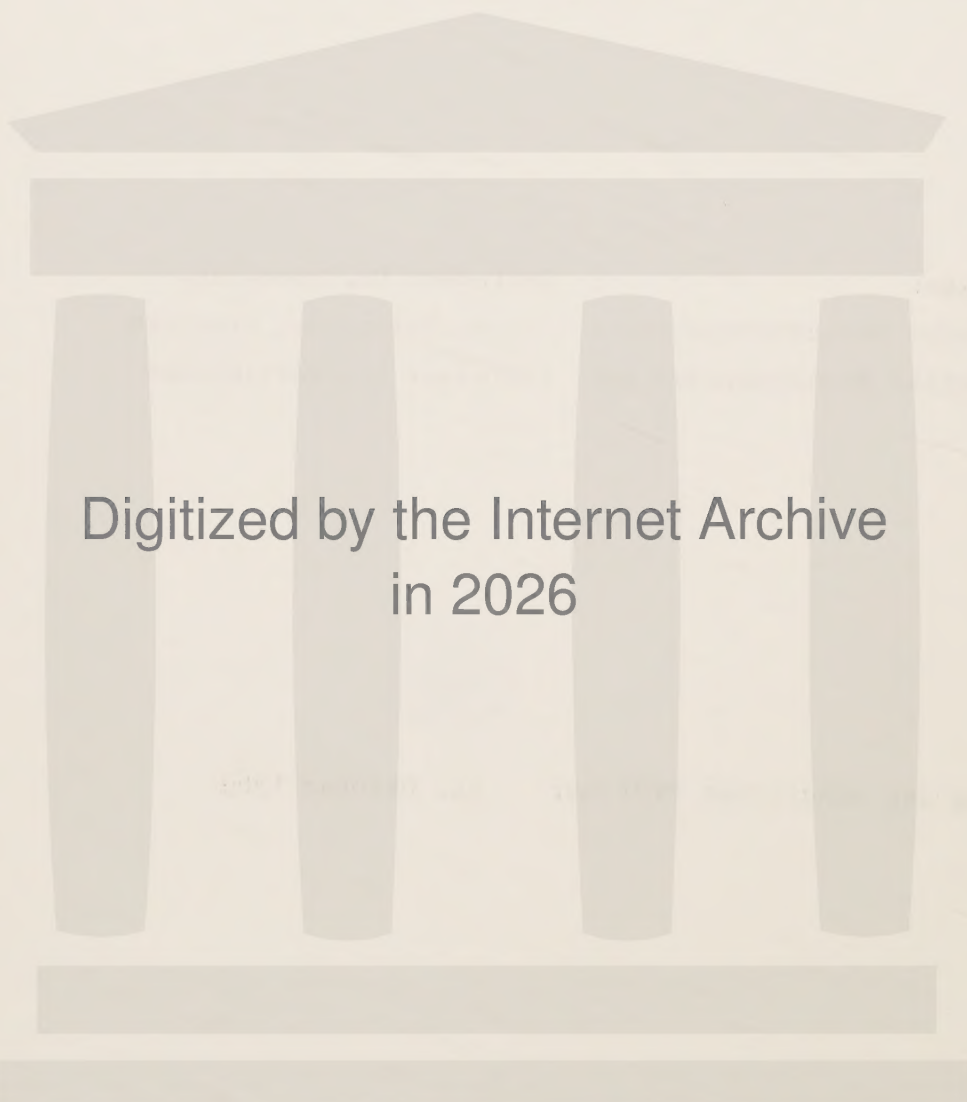
aus Insterburg

Frankfurt am Main, September 1969

Gedruckt mit Genehmigung der Naturwissenschaft-
lichen Fakultät der Universität Frankfurt/Main

Dekan : Professor Dr. Schneider
Erster Berichterstatter : Privat-Dozent Dr. Fröhlich
Zweiter Berichterstatter: Professor Dr. Martienssen

Tag der mündlichen Prüfung: 24. Oktober 1969



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41550827_0125

Inhaltsverzeichnis

Seite

1	Einleitung.....	1
2	Allg. Theorie der 2-Photonenabsorption.....	2
2.1	Die 2-Photonenabsorptionskonstante.....	2
2.2	Auswahlregeln.....	4
3	Experimentelles.....	5
3.1	Meßprinzip.....	6
3.2	Aufbau eines 2-Photonenspektralphotometers.....	6
3.3	Kristallpräparation.....	11
4	Experimentelle Ergebnisse.....	12
4.1	2-Photonenmessungen an RbJ.....	12
4.2	2-Photonenmessungen an CsJ und CsBr.....	15
5	Diskussion der experimentellen Ergebnisse.....	20
5.1	Das 2-Photonenspektrum von RbJ.....	20
5.2	Das Zweibandmodell.....	21
5.3	Die 2-Photonenspektren von CsJ und CsBr.....	23
5.4	Das Dreibandmodell.....	28
6	Zusammenfassung.....	32
7	Anhang.....	33
7.1	Theorie des Zweibandmodells.....	33
7.2	Theorie des Dreibandmodells.....	35
7.3	Schaltpläne und Beschreibungen zum elektronischen Teil des Spektralphotometers.....	39
8.	Literaturverzeichnis.....	49

1. Einleitung

Seit den ersten Messungen von Hopfield, Worlock und Park⁽¹⁾ im Jahre 1963 hat die 2-Photonenspektroskopie zunehmend an Bedeutung für Untersuchungen der Bandstruktur von Festkörpern gewonnen. Auf Grund der gegenüber der 1-Photonenabsorption geänderten Auswahlregeln kann man aus 2-Photonenmessungen neue Informationen über die elektronische Struktur der untersuchten Substanzen erwarten. Für die hier untersuchten 2-Photonenabsorptionsprozesse (2 Photonen werden absorbiert) gelten dieselben Auswahlregeln wie für einen schon lange bekannten 2-Photonenprozeß - nämlich dem Ramaneffekt⁽²⁾ (1 Photon wird absorbiert und 1 Photon wird emittiert). Mit dem Ramaneffekt (Differenzprozeß) kann man Übergänge kleiner Energie ($\Delta E < 1 \text{ eV}$) - also hauptsächlich vibronische Anregungen - untersuchen, während man mit der 2-Photonenabsorption (Summenprozeß) Übergänge größerer Energie ($\Delta E > 1 \text{ eV}$) - also hauptsächlich elektronische Anregungen - ausmessen kann. Wie beim Ramaneffekt kann man auch bei der 2-Photonenabsorption aus Messungen mit polarisiertem Licht auf die Symmetrie der angeregten Zustände schließen.

Im Rahmen dieser Arbeit wird erstmalig die 2-Photonenspektroskopie mit polarisiertem Licht auf Alkalihalogenide angewandt. Von den zahlreichen untersuchten Substanzen⁽³⁾ (NaBr, KBr, KJ, RbCl, RbBr, RbJ, CsBr, CsJ) sollen hier als repräsentative Vertreter der NaCl- bzw. CsCl-Struktur nur RbJ bzw. CsJ und CsBr eingehend behandelt werden. Die unterschiedliche Kristallstruktur (kubisch flächenzentriert bzw. einfach kubisch) bedingt, wie Berechnungen⁽⁴⁾ zeigen, charakteristische Unterschiede in der Bandstruktur. Die experimentellen Ergebnisse lassen sich im Rahmen zweier verschiedener Modelle - eines Zweibandmodells⁽⁵⁾ für RbJ und eines Dreibandmodells für CsJ und CsBr befriedigend erklären. Neben den erstmalig gemessenen Bandkanten, die als Parameter für die Bandberechnungen von großer Bedeutung sind, wird in CsJ ein Exziton gerader Parität gefunden. Kürzlich veröffentlichte Bandberechnungen für CsJ⁽⁶⁾ sind in guter Übereinstimmung mit den Meßresultaten.

Die hier vorliegende Arbeit gliedert sich in drei Teile: Im ersten Teil werden Ausdrücke für die 2-Photonenabsorptionskonstante und die Symmetrierauswahlregeln abgeleitet, die Größenordnung dieser Absorptionskonstanten angegeben und anhand der Auswahlregeln gezeigt, welche zusätzlichen Informationen man gegenüber der 1-Photonenspektroskopie über die elektronische Struktur der untersuchten Substanzen gewinnen kann.

Im zweiten Teil wird die Meßmethode und das zur Messung entwickelte vollautomatische 2-Photonenspektralphotometer⁽⁷⁾ beschrieben und kurz auf die Kristallpräparation eingegangen.

Im dritten Teil werden die Meßresultate angegeben, anhand der Bandstruktur diskutiert und mit den Ergebnissen des Zweiband- bzw. Dreibandmodells verglichen.

2. Allg. Theorie der 2-Photonenabsorption

Seit der ersten quantenmechanischen Behandlung der 2-Quantenübergänge durch Maria Goeppert-Mayer⁽⁸⁾ im Jahre 1931 sind zahlreiche theoretische Abhandlungen zu diesem Thema veröffentlicht worden⁽⁹⁾. Daher wird in den folgenden Kapiteln nur kurz auf die Ableitung des 2-Photonenabsorptionskoeffizienten und die sich daraus ergebenden Auswahlregeln eingegangen.

2.1 Die 2-Photonenabsorptionskonstante

Zur Ableitung betrachtet man ein Eielektronensystem in Wechselwirkung mit dem elektromagnetischen Feld. Für den Wechselwirkungsoperator H_w gilt dabei:

$$H_w = - \frac{e}{mc} \vec{p} \cdot \vec{A} + \frac{e^2}{2mc^2} \vec{A} \cdot \vec{A} = H_1 + H_2 \quad (1)$$

mit $\vec{A}$ als Vektorpotential des elektromagnetischen Feldes.

Berechnet man nun die Übergangswahrscheinlichkeit eines Systems für Prozesse, bei denen zwei Photonen gleichzeitig absorbiert werden, so liefert die Störungstheorie zweiter Ordnung in Dipolnäherung ($e^{ikr} = 1$, r - Atomradius, $k = \frac{2\pi}{\lambda}$) für den Operator H_1 :

$$K_1^{(2)}(\omega_1) = (2\pi)^3 \left(\frac{e}{m}\right)^4 \frac{F_2 N_0}{c^2 \sqrt{\epsilon_1 \epsilon_2} \omega_1 \omega_2 \delta E_f} \left| \sum_{e'} \frac{\langle f | \vec{e}_2 \cdot \vec{p} | e' \rangle \langle e' | \vec{e}_1 \cdot \vec{p} | i \rangle}{\hbar(\omega_{e'1} - \omega_1)} + \sum_{e'} \frac{\langle f | \vec{e}_1 \cdot \vec{p} | e' \rangle \langle e' | \vec{e}_2 \cdot \vec{p} | i \rangle}{\hbar(\omega_{e'1} - \omega_2)} \right|^2 \quad (2)$$

Dabei sind $|i\rangle$, $|e'\rangle$ und $|f\rangle$ Grund-, Zwischen- und Endzustand des elektronischen Systems, ω_1 , ω_2 die Frequenzen der beiden Photonenfelder mit den Polarisationsvektoren $\vec{e}_1$, $\vec{e}_2$, N_0 die Anzahl der Atome pro cm^3 , F_2 der Photonenfluß des Photonenfeldes 2 und ϵ_1 , ϵ_2 die Dielektrizitätskonstanten für die Frequenzen ω_1 , ω_2 . $K_1^{(2)}(\omega_1)$ ist die Absorptionskonstante für Photonen des Photonenfeldes 1. Für den Wechselwirkungsoperator H_2 liefert die Störungstheorie bereits in erster Ordnung einen 2-Photonenprozeß, der jedoch in Dipolnäherung wegen der Orthogonalität der Wellenfunktionen von Anfangs- und Endzustand verschwindet. Erst die Quadrupolnäherung führt zu einem von Null verschiedenen Absorptionskoeffizienten $K_2^{(2)}(\omega_1)$, der aber, wie Abschätzungen zeigen⁽¹⁰⁾, um den Faktor 10^4 kleiner ist als $K_1^{(2)}(\omega_1)$. Dieser 2-Photonenprozeß wird daher im folgenden nicht weiter berücksichtigt.

Um einen Eindruck von der Größe eines solchen 2-Photonenabsorptionskoeffizienten zu bekommen, soll hier das Ergebnis einer Modellrechnung für ein elektronisches System angegeben werden, bei dem der angeregte Zustand 7 eV über dem Grundzustand liegt und nur ein Zwischenzustand $|e'\rangle$ bei 6 eV vorhanden ist. Bei einer angenommenen Breite des Zwischen- und Endzustandes von 0.1 eV ergibt sich dann für die Absorptionskonstante:

$$K_1^{(2)}(\omega_1) = 1.6 \cdot 10^{-27} \cdot F_2$$

Bei einem Photonenfluß F_2 der zweiten Lichtquelle von $6 \cdot 10^{26}$ Photonen/ $\text{cm}^2 \text{ sec}$ nimmt also die Absorptionskonstante für Photonen der ersten Lichtquelle einen Wert von 1 cm^{-1} an. (Dem angegebenen Photonenfluß entspricht bei einer Photonenenergie $\hbar\omega_2$ von 1.78 eV

eine Leistung von rund 50 MW/cm^2 !) Photonenflüsse dieser Grösse lassen sich nur mit Riesenimpulslasern erzeugen. Eine der benutzten Lichtquellen muß daher ein Laser sein.

2.2 Auswahlregeln

Hier sollen nur die Auswahlregeln für 2-Photonenabsorptionsprozesse in Kristallen kubischer Symmetrie angegeben werden, die bei der Untersuchung von Alkalihalogeniden von Wichtigkeit sind. Das übliche Verfahren⁽¹¹⁾ besteht in einer Zerlegung des den Übergang beschreibenden Operators in Basisfunktionen der irreduziblen Darstellungen von O_h . Ausgehend von einem totalsymmetrischen Grundzustand Γ_1^+ sind dann alle erlaubten Endzustände bekannt.

Anschaulicher lassen sich die Auswahlregeln folgendermaßen gewinnen: Ein 2-Photonenübergang läßt sich auffassen als zwei aufeinander folgende 1-Photonenübergänge. Der diesen 1-Photonenprozeß beschreibende Dipoloperator transformiert sich in O_h

wie Γ_4^- . Das Transformationsverhalten des einen 2-Photonenübergang beschreibenden Tensors ist dann durch das direkte Produkt der Darstellungen $\Gamma_4^- \times \Gamma_4^-$ gegeben. Durch Ausreduzieren erhält man die vier Darstellungen Γ_1^+ , Γ_3^+ , Γ_4^+ und Γ_5^+ . Ausgehend von einem vollsymmetrischen Grundzustand Γ_1^+ sind also bei der 2-Photonenabsorption Übergänge zu Endzuständen der Symmetrie Γ_1^+ , Γ_3^+ , Γ_4^+ und Γ_5^+ erlaubt, während bei der 1-Photonenabsorption bekanntlich nur ein Endzustand der Symmetrie Γ_4^- erreicht werden kann.

Wie Inoue und Toyozawa⁽¹²⁾ gezeigt haben, liefert die Messung der Polarisationsabhängigkeit des 2-Photonenabsorptionskoeffizienten Symmetriezuordnungen der Endzustände. Die Abhängigkeit der 2-Photonenabsorption von den Polarisationsvektoren $\hat{e}_1$ und $\hat{e}_2$ der beiden Lichtquellen läßt sich durch Zerlegung des den Übergang beschreibenden Tensors in irreduzible Darstellungen gewinnen. Sie lautet für den Fall kubischer Symmetrie (O_h) für die vier

Darstellungen folgendermaßen:

$$\begin{aligned}
 \Gamma_1^+ &: (l_1 l_2 + m_1 m_2 + n_1 n_2)^2 = (\vec{\epsilon}_1 \cdot \vec{\epsilon}_2)^2 \\
 \Gamma_3^+ &: l_1^2 l_2^2 + m_1^2 m_2^2 + n_1^2 n_2^2 - (l_1 l_2 m_1 m_2 + m_1 m_2 n_1 n_2 + n_1 n_2 l_1 l_2) \\
 \Gamma_4^+ &: 1 - (l_1 l_2 + m_1 m_2 + n_1 n_2)^2 = (\vec{\epsilon}_1 \times \vec{\epsilon}_2)^2 \\
 \Gamma_5^+ &: 1 - (l_1^2 l_2^2 + m_1^2 m_2^2 + n_1^2 n_2^2) \\
 &\quad + 2 (l_1 l_2 m_1 m_2 + m_1 m_2 n_1 n_2 + n_1 n_2 l_1 l_2)
 \end{aligned} \tag{3}$$

Dabei sind l , m , n die Komponenten der Polarisationsvektoren bezüglich der Kristallachsen.

Diese Ergebnisse gelten für den Fall der Absorption am Γ -Punkt. Erfolgen die 2-Photonenübergänge an anderen Stellen der Brillouinzone, so erfordert die Berechnung der Polarisationsabhängigkeit die Zerlegung des Übergangstensors in irreduzible Darstellungen in der entsprechenden Punktgruppe geringerer Symmetrie. Die Gesamtübergangswahrscheinlichkeit ergibt sich dann durch Aufsummation der Übergangswahrscheinlichkeiten an den äquivalenten Punkten der Brillouinzone. Die sich dabei ergebenden Winkelabhängigkeiten sind berechnet⁽¹²⁾. Eine Analyse gemessener Polarisationsabhängigkeiten gestattet also Rückschlüsse auf die Symmetrie des Endzustandes und damit auch die Bestimmung der Stelle in der Brillouinzone, an der der optische Übergang stattfindet.

3. Experimentelles

Dieser Teil der Arbeit gliedert sich in drei Abschnitte. Im ersten Abschnitt wird das Prinzip der Messung kurz erläutert. In dem darauf folgenden Abschnitt wird auf den Aufbau eines 2-Photonenspektralphotometers eingegangen, mit dem die Spektren der untersuchten Kristalle gemessen werden. Auf die Kristallpräparation wird schließlich im dritten Abschnitt eingegangen.

3.1 Meßprinzip

Das Prinzip der 2-Photonenspektroskopie beruht auf der Messung der Änderung ΔI der von einer Probe hindurchgelassenen Intensität I_0 einer Lichtquelle (Photon 1), induziert durch die gleichzeitige Bestrahlung der Probe mit einer zweiten Lichtquelle (Photon 2). Aus der Beziehung $I = I_0 e^{-k_{2\text{phot}} \cdot d}$ ergibt sich dann die 2-Photonenabsorptionskonstante

$$k_{2\text{phot}} = \frac{1}{d} \ln \left(I_0 / (I_0 - \Delta I) \right) \approx \frac{1}{d} \frac{\Delta I}{I_0} \quad (k_d \ll 1) \quad (4)$$

3.2 Aufbau eines 2-Photonenspektralphotometers

In Abb. 1 ist der Aufbau des Spektralphotometers⁽⁷⁾ schematisch wiedergegeben. Die Anlage setzt sich im wesentlichen aus drei Teilen zusammen:

- I Ein 1-Photonenaufbau, bestehend aus Lichtquelle, abbildendem Spiegelsystem, Polarisator, Kryostat mit Probe, Filter, Monochromator und Photomultiplier.
- II Eine Anordnung zur Bestrahlung der Probe, die sich zusammensetzt aus Riesenimpulslaser, Soleilkompensator zur Einstellung der Polarisationsrichtung und einer Photodiode zur Registrierung der Laserintensität.
- III Ein elektronisches System, aufgebaut aus verschiedenen Triggerkreisen, Verstärkern und Analog-Digital-Konverttern zur Messung der den Absorptionskoeffizienten bestimmenden Signale.

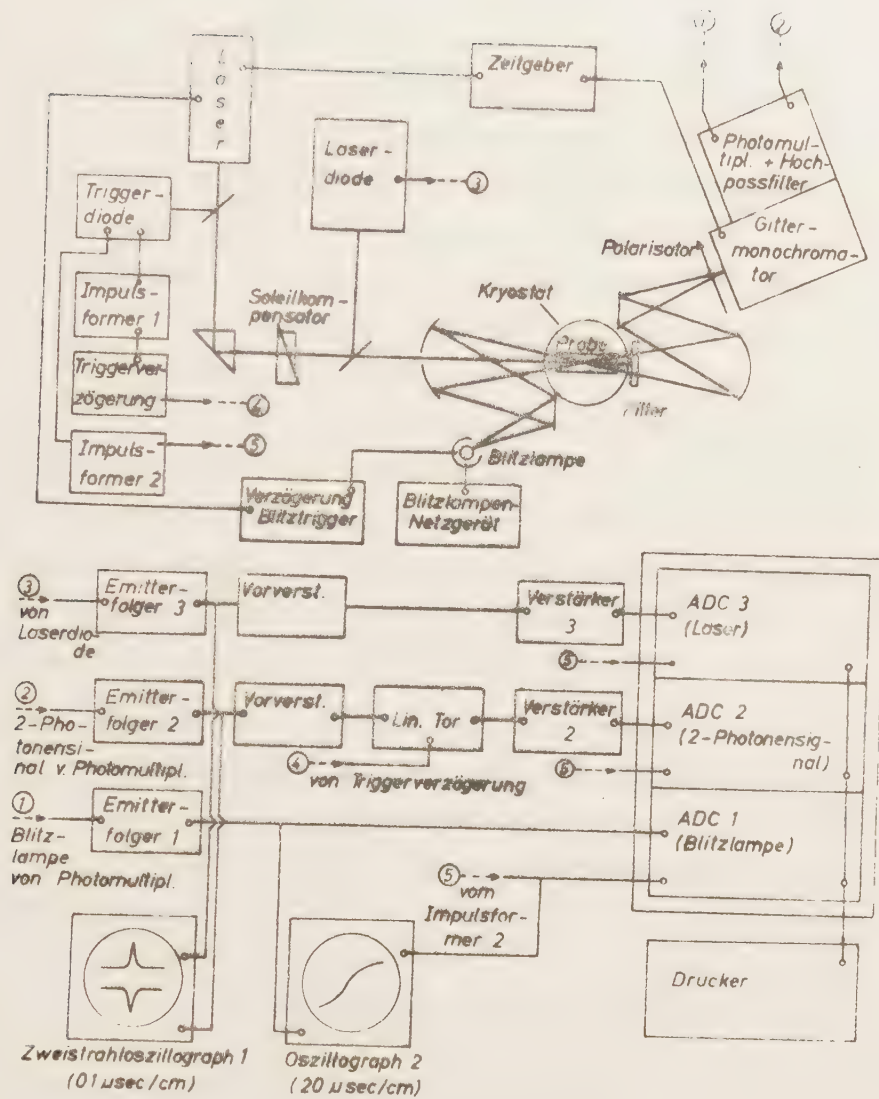


Abb. 1

Schematischer Aufbau des 2-Photonenspektralphotometers

Als Riesenimpulslaser wird ein Q-switched Rubinlaser der Firma TRG Inc. (New York) verwendet. (Typ TRG 104 A, $h\nu_2 = 1.78 \text{ eV}$, Impulsbreite $\approx 2 \cdot 10^{-8} \text{ sec}$, Leistung $\approx 50 \text{ MW}$)

Zur Messung der 2-Photonenabsorptionskonstanten als Funktion der Gesamtenergie $h\nu_1 + h\nu_2$ muß die zweite Lichtquelle kontinuierlich durchstimmbar sein. Es werden daher Lichtquellen mit kontinuierlichem Emissionsspektrum eingesetzt, aus dem dann Licht der gewünschten Wellenlänge mit einem Gittermonochromator (1 m Jarrell Ash) ausgefiltert wird. Als Meßlichtquelle dient eine selbstgebaute Xenon-Blitzlampe; Xenon-Blitzlampen zeigen ein kontinuierliches Emissionsspektrum und liefern sehr hohe Intensitäten. Die Impulsdauer dieser Lampe beträgt 3 μsec bei einer Energie von ca. 20 Js; diesen Angaben entspricht eine ungefähre Leistung von 6 MW. Die Verwendung einer gepulsten Meßlichtquelle wird durch den nur etwa 20 nsec langen Laserimpuls ermöglicht. Da nämlich das 2-Photonensignal dem zeitlichen Verlauf des Lasersignals folgt⁽¹⁰⁾, braucht auch die Intensität der Lichtquelle nur während dieses Zeitraumes konstant zu sein.

Die Verwendung von möglichst intensiven Meßlichtquellen ist nötig, um bei der großen Bandbreite der nachgeschalteten Elektronik (50 MHz) ein gutes Signal-zu-Rauschverhältnis (S/R) zu haben. Das Rauschen bei hohen Lichtintensitäten ist durch den Schrotteffekt gegeben; es gilt:

$$S/R = \sqrt{\frac{i}{2e \Delta f}}$$

wobei i der Kathodenstrom des Photomultipliers, e die Elementarladung und Δf die Bandbreite des Registriersystems sind. Da die Bandbreite des Systems durch die Forderung festgelegt ist, die 2-Photonensignale (Breite ca. 20 nsec) zeitgetreu wiederzugeben, kann man S/R allein durch die Vergrößerung des Kathodenstromes i verbessern. Dies kann einmal durch große Lichtintensitäten erreicht werden, zum anderen durch Verwendung von Photomultipliern hoher Kathodenempfindlichkeit. Im Spektralphotometer wird bis zu einer Wellenlänge von 2300 Å hinunter ein XP 1003-Multiplier der Firma Valvo eingesetzt (S-20-Kathode).

Das störende Laserstreulicht wird durch eine NiSO_4 - Filterlösung entfernt. Um bei den auftretenden hohen Kathodenströmen die Anode nicht zu übersteuern, werden zur Verstärkung lediglich fünf Dynoden benutzt. Da unterhalb von $2300 \text{ \AA}$ die Eigenabsorption von NiSO_4 einsetzt, kann es nicht mehr als Filter benutzt werden. Für Messungen in diesem Spektralbereich wird ein Multiplier vom Typ R 166 verwendet. Dieser Multiplier verfügt über eine Spezialkathode, deren Empfindlichkeit auf den Spektralbereich von $1600 - 3200 \text{ \AA}$ beschränkt ist. Störungen der Messungen durch Laserstreulicht können in diesem Fall nicht auftreten. Auch hier werden nur 6 Dynoden benutzt, um Übersteuerungen der Anode zu vermeiden. Nachteilig ist die geringere Kathodenempfindlichkeit, die in Verbindung mit der in diesem Spektralbereich zunehmenden Absorption des Polarisators (Polacoat PL 40) zu einer Verschlechterung des Signal-Rauschverhältnisses und damit zu einer abnehmenden Genauigkeit führt.

Im unteren Teil der Abb. 1 ist ein Blockschaltbild des elektronischen Teils des 2-Photonenspektralphotometers angegeben, in dem die drei für die Berechnung einer 2-Photonenabsorptionskonstanten erforderlichen Größen I_0 , ΔI und I_L verarbeitet und registriert werden. I_L , die Laserintensität, wird mit einer Siliziumphotodiode (SGD 100, Edgerton, Germeshausen and Grier, Inc.) gemessen und dient zur Normierung der Absorptionskonstanten auf gleichen Laserfluß.

Das ΔI -Signal, d.h. die Änderung der Intensität des Meßlichtes und das I_0 -Signal, d.h. die Intensität der Meßlichtquelle vor der Emission des Lasers werden mit dem Photomultiplier gemessen. Das zeitlich wesentlich kürzere ΔI -Signal wird mit einem besonderen L-C-Hochpaßfilter vom I_0 -Signal abgetrennt. Alle drei Signale durchlaufen zunächst Emitterfolger (das I_0 -Signal wird zusätzlich in einer Umkehrstufe invertiert) zur Impedanzwandlung, um zur Weiterverarbeitung der Impulse möglichst niederohmige Signalquellen zur Verfügung zu haben.

Es besteht nun die Möglichkeit, diese drei Signale auf Oszillographen sichtbar zu machen und mit entsprechend hochempfindlichem Film zu photographieren. Dieses Verfahren wurde bisher

zur Messung von 2-Photonenspektren benutzt. Diese Methode ist wegen des Filmverbrauchs sehr kostspielig und mühsam und läßt keine automatische Registrierung der Spektren zu.

Das zweite, im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Verfahren, besteht in der Impulshöhenmessung der drei Signale unter Verwendung von Analog-Digital-Konvertern (ADC). Die Ausgangssignale dieser ADC's, die den Impulshöhen der Eingangssignale proportional sind, werden auf einem Drucker registriert. Da diese ADC's nur Eingangsimpulse ab einer Breite von $0.3 \mu\text{sec}$ verarbeiten können, ist eine Dehnung der schnellen Δf und f_L -Signale erforderlich. Diese Dehnung wird durch Integration in den beiden Hauptverstärkern erreicht. Das Δf -Signal durchläuft vor der Integration ein lineares Gate. Dieses Gate (Chronetics Inc., Modell 116) ist für eine Zeit von 50 nsec geöffnet und läßt lediglich das Δf -Signal passieren. Durch die Verwendung eines solchen Gates wird vermieden, daß Multiplerrauschen und Schwankungen der Blitzlampenintensität vor Emission des Lasers den Hauptverstärker erreichen und dort mit integriert werden. Die zeitlich richtige Öffnung dieses Gates wird durch eine einstellbare Verzögerung des Gate-Triggerimpulses bewirkt; bedingt durch die interne Laufzeit des Signals im Photomultiplier ($\approx 60 \text{ nsec}$) liegt nämlich durch die sehr geringe Verzögerung des Laser-Trigger signals in der Photodiode das Triggersignal zeitlich vor dem 2-Photonenabsorptionssignal. Durch die Verwendung identischer Verstärker und gleicher Zeitkonstanten bleiben Impulsbreitenschwankungen des Lasersignals ohne Einfluß auf die gemessene 2-Photonenabsorptionskonstante. Wie aus Abb. 1 zu ersehen ist, werden alle drei ADC's extern getriggert. Besonders wichtig ist diese Maßnahme für ADC 3, der f_0 , die Impulshöhe der Blitzlampe vor der Laseremission, registriert. Dieser ADC darf daher nur zu dem Zeitpunkt geöffnet werden, zu dem tatsächlich der Laser emittiert.

Eine Zusammenstellung der Schaltpläne der dabei benutzten Einheiten und die auftretenden Impulse sind im Anhang angegeben.

Von den drei auf dem Drucker angegebenen Zahlen ergibt sich dann gemäß Gleichung (4) die 2-Photonenabsorptionskonstante. Ein Meßzyklus zur Bestimmung der Absorptionskonstanten verläuft nun folgendermaßen:

Zuerst wird die Blitzlampe des Lasers durch Hand bzw. einen Zeitgeber gezündet. Ein Signal aus dem Laser-Trigger wird ungefähr 5 μ sec verzögert und zündet die Xenon-Blitzlampe. Damit ist gewährleistet, daß die Emission des Lasers mit dem Maximum der Intensität der Meßlichtquelle zusammenfällt. Gleichzeitig werden durch Photodiode und Impulsformerstufe 2 die Analog-Digital-Konverter und die Oszillographen getriggert; eine zweite Photodiode triggert über Impulsformerstufe 1 und ein Verzögerungsglied das Gate. Nach der Verarbeitung der Signale wird der Drucker durch ADC 1 angesteuert und liefert die Analog-Signale für I_0 , ΔI und I_L .

Der gesamte elektronische Teil der Anlage ist in der Lage, bis zu 1000 Impulse/sec zu verarbeiten. Leider ist die Folgefrequenz jedoch durch den benutzten Laser auf maximal 2 Impulse/min beschränkt. Durch die Verwendung von Lasern höherer Impulsfolgefrequenz ließe sich die Meßgeschwindigkeit also beträchtlich erhöhen.

3.3 Kristallpräparation

Die Abmessungen der benutzten Proben betragen ca. 6 x 6 x 30 mm. Orientierte RbJ-Proben dieser Größen erhält man durch Spalten größerer Kristalle.

Die Orientierung der CsJ und CsBr-Kristalle wird anhand von $[110]$ -Flächen vorgenommen, die beim Spalten bei tiefen Temperaturen auftreten. Aus diesen orientierten Kristallen werden dann Proben der angegebenen Abmessungen herausgesägt, geschliffen und mit einer Mischung von 3 Teilen Methanol und 1 Teil Wasser auf einem Ledertuch poliert. Anschließend wird die Orientierung mit Hilfe von Druckfiguren und der Spannungsdoppelbrechung nochmals überprüft⁽¹³⁾.

Um die Kristalle für Messungen mit polarisiertem Licht verwenden zu können, müssen alle Spannungen durch Tempern beseitigt werden. Getempert wird bei Temperaturen von ungefähr 100°C unterhalb des Schmelzpunktes in einer Argonatmosphäre. Die Abkühlungsgeschwindigkeit der getemperten Proben beträgt ca. 200°C/h . Das Auftreten von Spannungen beim Einbau in den Kryostaten wird durch möglichst geringe mechanische Beanspruchung vermieden.

4. Experimentelle Ergebnisse

In den folgenden Kapiteln werden die mit dem Spektralphotometer gemessenen 2-Photonenspektren von orientierten RbJ-, CsJ- und CsBr-Kristallen erläutert. Die Geometrie ist dabei so gewählt, daß die $\vec{k}$ -Vektoren von Meß- und Laserlicht mit der $[100]$ -Richtung der Kristalle zusammenfallen. Alle gemessenen Spektren sind auf einen Laserfluß von 5×10^{25} Photonen/ $\text{cm}^2 \text{ sec}$ normiert. Die Meßergebnisse werden diskutiert und mit Modellrechnungen verglichen.

4.1 2-Photonenmessungen an RbJ

In Abb. 2 ist das 2-Photonenspektrum von RbJ⁽³⁾ wiedergegeben. Zum Vergleich ist das entsprechende 1-Photonenspektrum⁽¹⁴⁾ eingezeichnet. Das 2-Photonenspektrum setzt bei 6.10 eV ein und steigt strukturlos zu höheren Energien hin an. Abb. 3 zeigt die charakteristische Polarisationsabhängigkeit der 2-Photonenabsorption, deren Form sich im gemessenen Energiebereich nicht verändert. Wie aus den Abbildungen hervorgeht, ist das Verhältnis von größter und kleinster Absorptionskonstanten unabhängig von der relativen Orientierung der Polarisationsvektoren bezüglich der Kristallachsen und nimmt einen Wert von 1.61 an.

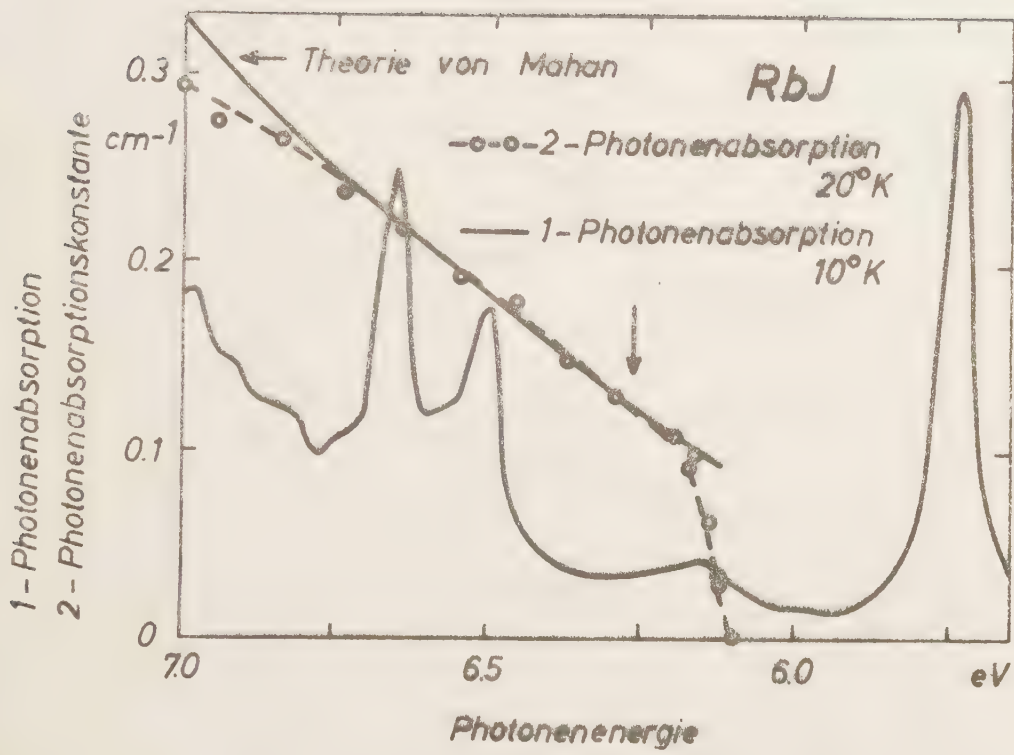


Abb. 2

1- und 2-Photonenspektrum von RbJ. Der Pfeil gibt die Lage der Bandlücke an.

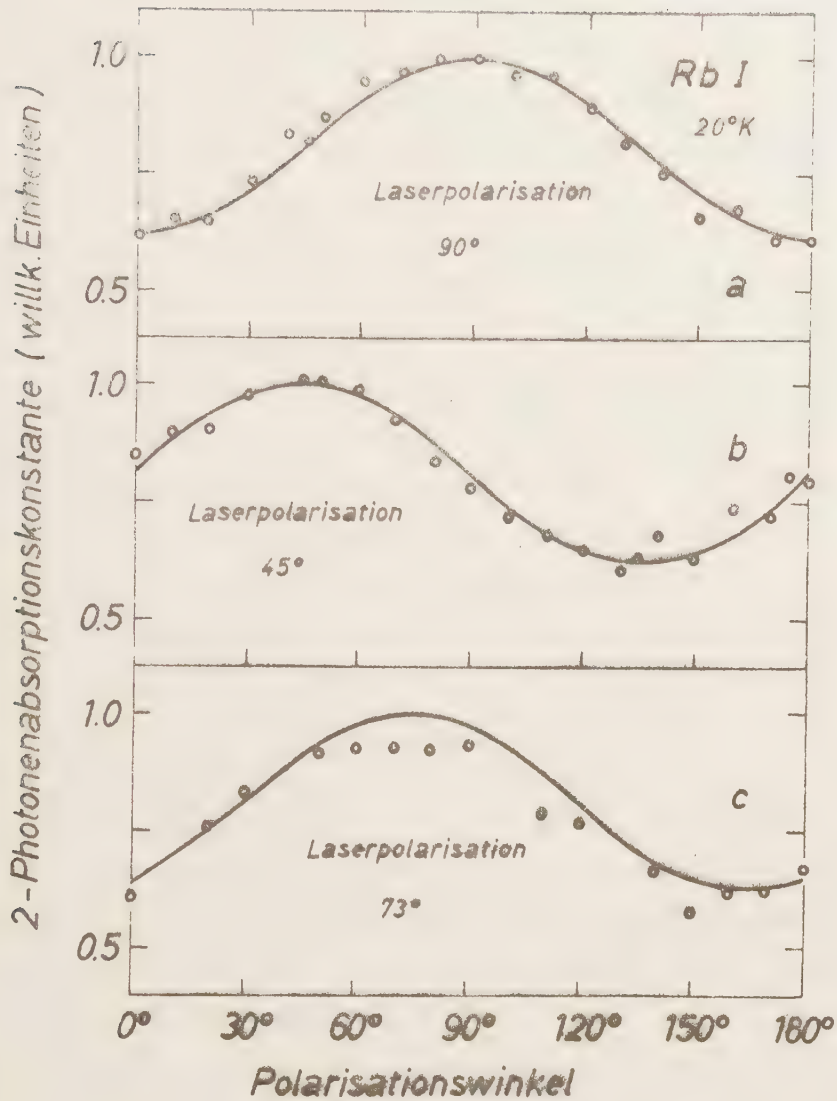


Abb. 3

Polarisationsabhängigkeit der 2-Photonenabsorption von RbI bei 6.8 eV. Die ausgezogenen Kurven in a) und b) sind den Experimenten angepaßt. Die Kurve in c) ist aus der Anpassung in a) und b) berechnet. 0° entspricht der [010] Kristallachse.

4.2 2-Photonenmessungen an CsJ und CsBr

Das 2-Photonenspektrum von CsJ ist in einem Energiebereich von 6.00 eV bis 6.80 eV bei 20° K gemessen worden. In Abb. 4 ist dieses Spektrum mit den angegebenen Polarisationsrichtungen von Laser- und Blitzlampenlicht wiedergegeben. Zum Vergleich ist das 1-Photonenspektrum nach Messungen von Teegarden und Baldini⁽¹⁴⁾ eingezeichnet. Das 2-Photonenspektrum setzt bei 6.050 eV ein und zeigt einen zweiten Anstieg bei 6.300 eV. Besonders deutlich tritt dieser zweite Anstieg bei dem mit parallelen Polarisationsvektoren von Meß- und Laserlicht gemessenen Spektrum auf. Bei dem mit senkrechter Einstellung dieser beiden Polarisationsvektoren aufgenommenen Spektrum ist dem zweiten Anstieg bei 6.300 eV eine ausgeprägte Struktur überlagert. Im oberen Teil der Abbildung ist der Quotient aus diesen beiden Absorptionskoeffizienten ($k_{2\text{Phot}}(0^\circ, 0^\circ) : k_{2\text{Phot}}(90^\circ, 0^\circ)$) aufgetragen, der bis auf einen kleinen Bereich um 6.300 eV unabhängig von der Energie einen Wert von 2.38 annimmt. Abb. 5 zeigt das 2-Photonenspektrum von CsBr, das bei 7.180 eV einsetzt und einen zweiten Anstieg bei 7.500 eV zeigt. Im Gegensatz zu CsJ treten keinerlei Strukturen im Absorptionsspektrum auf. Zum Vergleich ist wieder das entsprechende 1-Photonenspektrum angegeben⁽¹⁴⁾. Das Verhältnis der Absorptionskonstanten $k_{2\text{Phot}}(0^\circ, 0^\circ) : k_{2\text{Phot}}(90^\circ, 0^\circ)$ ist konstant und beträgt unabhängig von der Energie 1.50 (Abb. 6).

In Abb. 7 und Abb. 8 ist das Einsetzen der 2-Photonenabsorption bei CsJ und CsBr als Funktion der Temperatur aufgetragen. Für die energetischen Verschiebungen ergeben sich Werte von 0.049 eV/100° K für CsJ und 0.080 eV/100° K für CsBr. Die energetische Lage der bei 6.250 eV auftretenden Struktur im 2-Photonenspektrum von CsJ ist dagegen temperaturunabhängig.

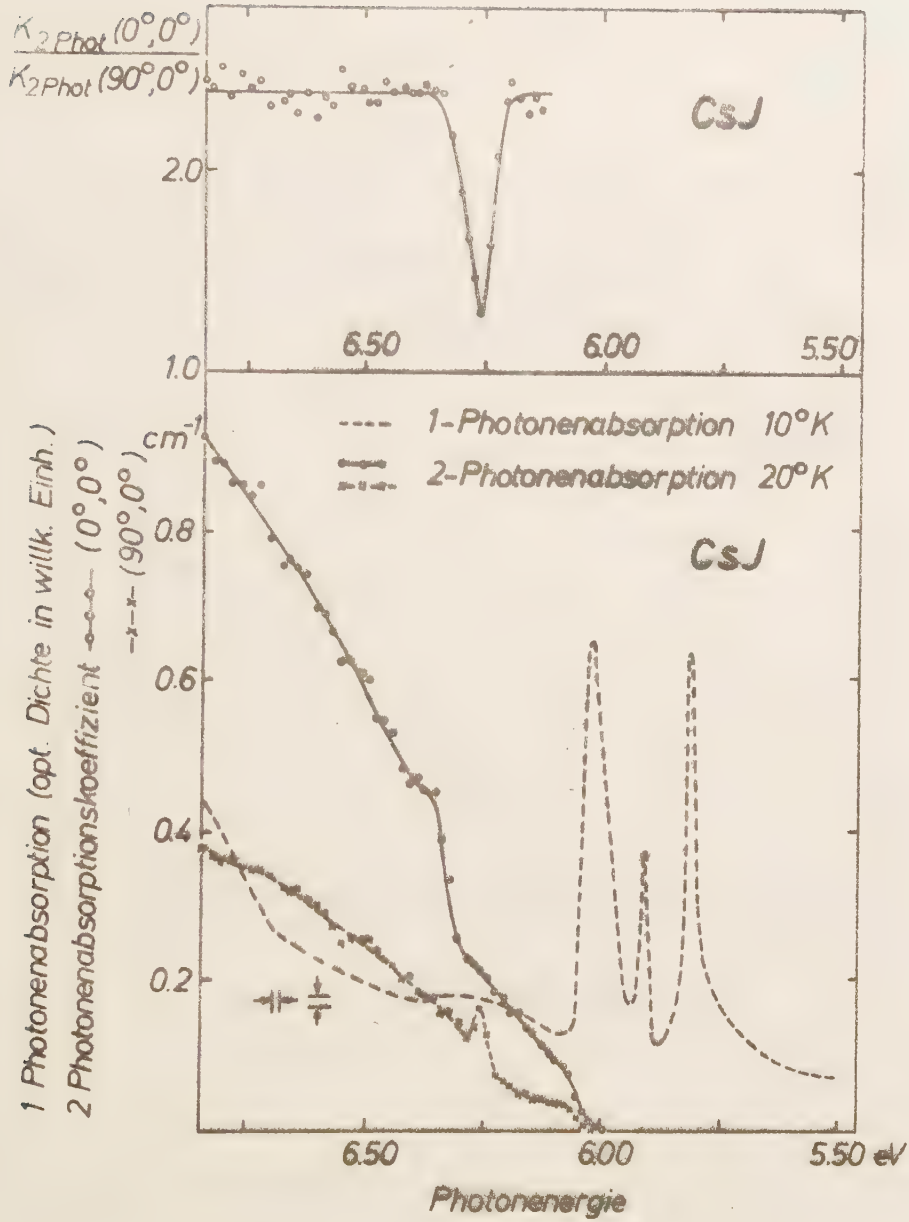


Abb. 4

1- und 2-Photonenspektrum von CsJ.

Im oberen Teil der Abbildung ist der Quotient der Absorptionskoeffizienten $K_{2Phot}(0^\circ, 0^\circ)$ und $K_{2Phot}(90^\circ, 0^\circ)$ wiedergegeben.

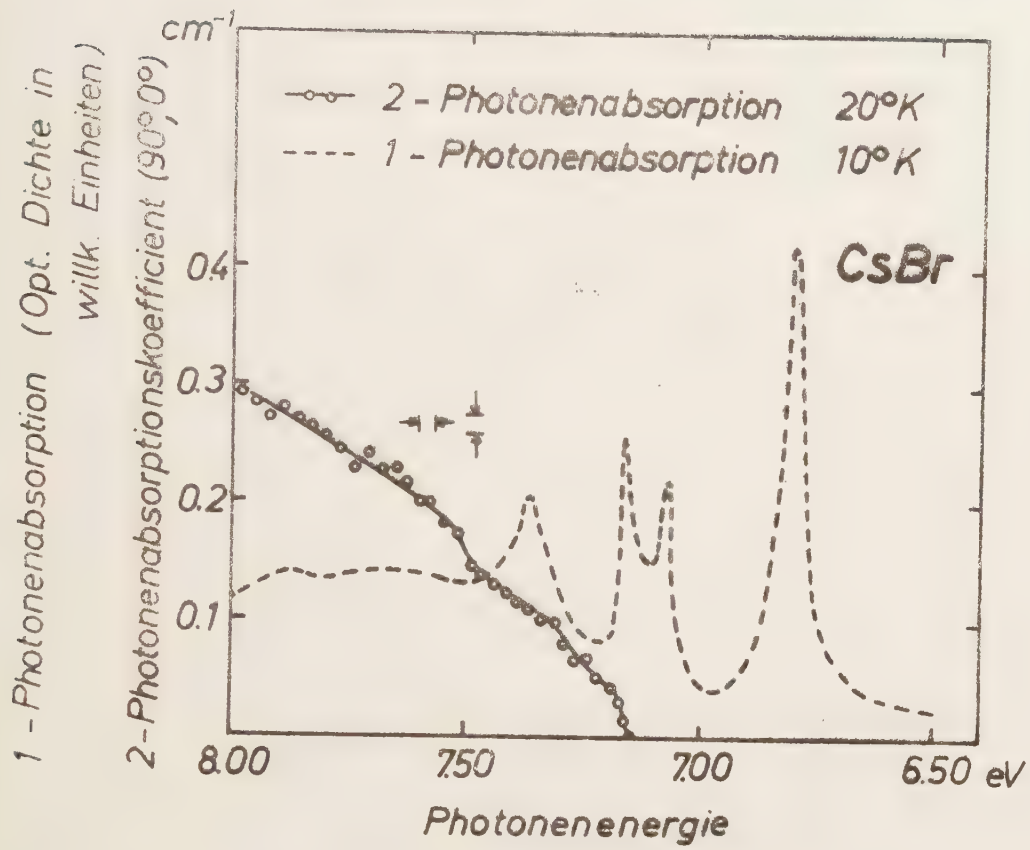


Abb. 5

1- und 2-Photonenspektrum von CsBr

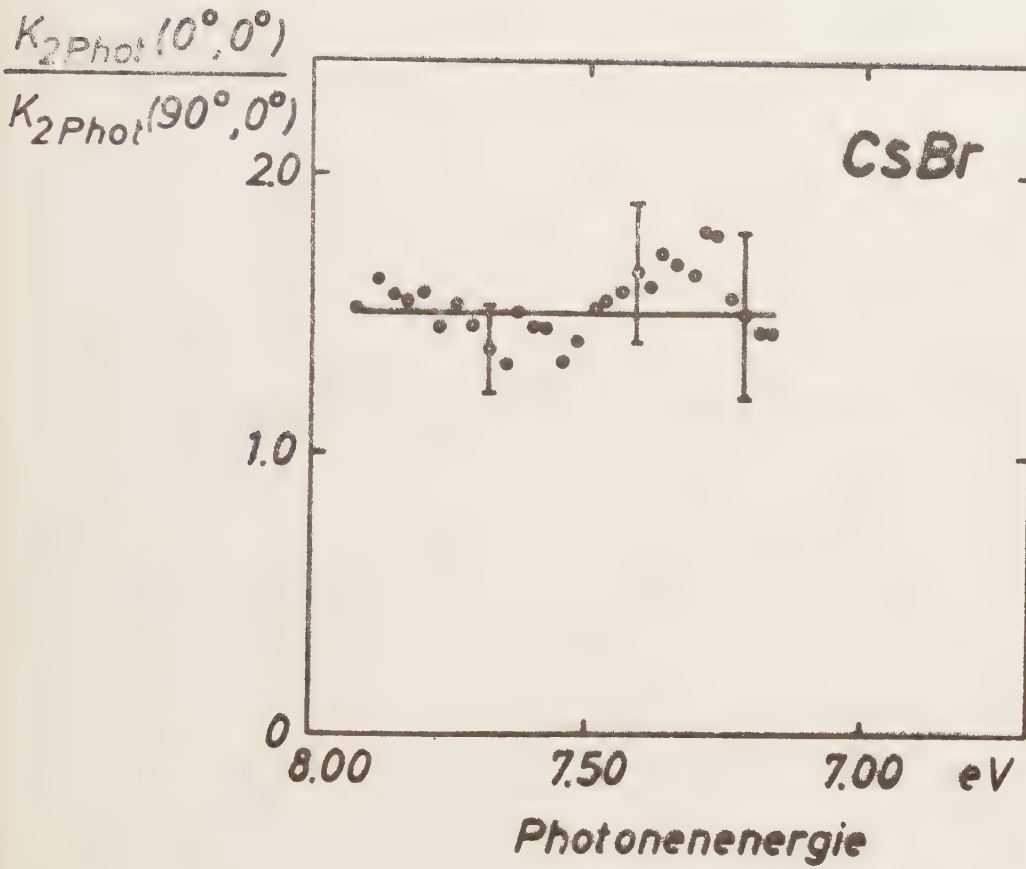


Abb. 6

Polarisationsverhältnis $K_{2Phot}(0^\circ, 0^\circ) : K_{2Phot}(90^\circ, 0^\circ)$ von CsBr

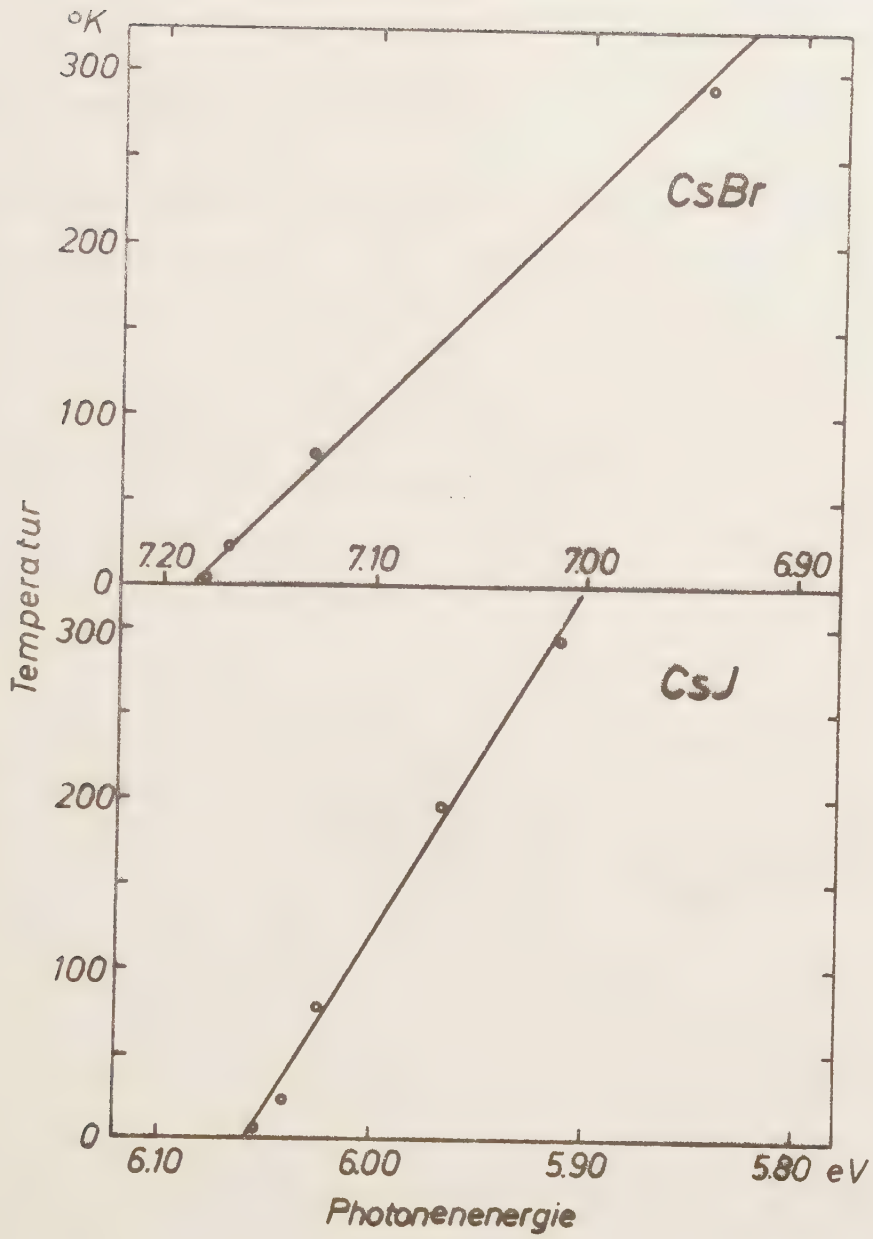


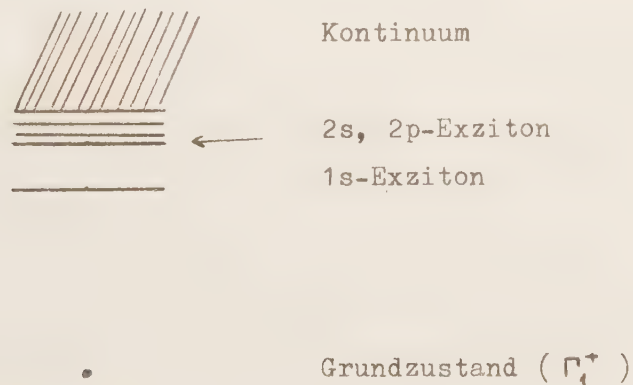
Abb. 7 und 8

Einsetzen der 2-Photonenabsorption bei CsJ und CsBr als Funktion der Temperatur.

5. Diskussion der experimentellen Ergebnisse

5.1 Das 2-Photonenspektrum von RbJ

Das gemessene Spektrum wird Übergängen zu p-Exzitonen bzw. Kontinuumszuständen am Γ -Punkt zugeordnet. Übergänge zu s-Exzitonen sind im Gegensatz zur 1-Photonenabsorption hier wegen der Paritätsauswahlregel verboten. Eine Gegenüberstellung der Auswahlregeln für Übergänge zu Exzitonen in 1- und 2-Photonenabsorptionen soll dies nochmals verdeutlichen. Dabei werden nur das oberste Valenzband (Γ_4^-) und das tiefste Leitungsband (Γ_1^+) berücksichtigt. Die Anregungszustände des Kristalls lassen sich im Exzitonenbild schematisch folgendermaßen darstellen:



Die Symmetrie eines Exzitons ist durch das direkte Produkt der Symmetrien von Loch im Valenz- und Elektron im Leitungsband und der Symmetrie der Relativbewegung (beschrieben durch die Envelope) gegeben. Je nach der Symmetrie dieser Envelope-Funktion unterscheidet man s-Exzitonen ($\Gamma_2 = \Gamma_1^+$) und p-Exzitonen ($\Gamma_2 = \Gamma_4^-$). Für die Symmetrie der hier aufgeführten s- und p-Exzitonen in RbJ erhält man dann durch Ausreduzieren

$$\Gamma_{ex}^s = \Gamma_1^+ \times \Gamma_1^+ \times \Gamma_4^- = \Gamma_4^-$$

$$\Gamma_{ex}^p = \Gamma_1^+ \times \Gamma_4^- \times \Gamma_4^- = \Gamma_1^+ + \Gamma_3^+ + \Gamma_4^+ + \Gamma_5^+$$

Γ_1^+ ist die Symmetrie des Grundzustandes des Kristalls mit gefüllten Valenzbändern und leeren Leitungsbändern. Wie sich zeigt, sind 1-Photonenübergänge vom Grundzustand zu s-Exzitonen dipolerlaubt, 2-Photonenübergänge hingegen paritätsverboten. 1-Photonenübergänge zu p-Exzitonen sind dagegen paritätsverboten, 2-Photonenübergänge jedoch dipolerlaubt.

Das Einsetzen der 2-Photonenabsorption bei 6.10 eV entspricht einem Übergang zum 2p-Exziton, gebildet aus Loch im Γ_4^- -Valenz- und Elektron im Γ_1^+ -Leitungsband; eine Trennung dieses Exzitons von den sich daran anschließenden Übergängen in Kontinuumszustände ist wegen der kleinen Bindungsenergie nicht zu erwarten ($E_{B,2p} = \frac{1}{4} E_{B,1s}$). Der Anstieg des Spektrums zu höheren Energien hin ist durch den Resonanznenner (Formel (1)) und die zunehmende Zustandsdichte der Endzustände bedingt.

5.2 Das Zweibandmodell

Die ausgezogene Kurve in Abb. 2 gibt den Verlauf der 2-Photonenabsorption nach Rechnungen von Mahan⁽⁵⁾ wieder und ist in guter Übereinstimmung mit dem gemessenen Spektrum.

In diesem Kapitel wird näher auf das Zweibandmodell nach Mahan eingegangen und vor allem die berechnete Polarisationsabhängigkeit des Absorptionskoeffizienten mit den experimentellen Resultaten verglichen.

In Formel (1) ist die 2-Photonenabsorptionskonstante in der allgemeinsten Form angegeben. Bei bekanntem Grund- und Endzustand ist dabei über alle möglichen Zwischenzustände, gewichtet mit dem entsprechenden Energieresonanznenner, zu summieren. Im Zweibandmodell wird nun zur Vereinfachung der Rechnung angenommen, daß auf Grund der Bandstruktur von RbJ im wesentlichen als Zwischenzustände nur s-Exzitonen, gebildet aus Loch im obersten Γ_4^- -Valenzband und Elektron im tiefsten Γ_1^+ -Leitungsband zu berücksichtigen sind. Alle anderen möglichen Zwischenzustände können wegen des ungünstigeren Resonanznenners dem gegenüber vernachlässigt werden. Endzustand ist dabei das 2p-Exziton, wiederum gebildet aus Loch im

Γ_4^- -Valenzband und Elektron im Γ_1^+ -Leitungsband. Zu größeren Energien hin schließen sich die höheren Anregungszustände des p-Exzitons an, die schließlich in Kontinuumszustände übergehen. Die unter diesen Voraussetzungen durchgeführte Ableitung ist im Anhang (Kap. 7.1) wiedergegeben. Für die Polarisationsabhängigkeit der 2-Photonenabsorption liefert die Rechnung folgenden Ausdruck:

$$W(\vartheta) = A \cdot \cos^2 \vartheta + B \cdot \sin^2 \vartheta$$

$$\text{mit } A = |\mathfrak{F}_1 + \mathfrak{F}_2|^2, \quad B = |\mathfrak{F}_1|^2 + |\mathfrak{F}_2|^2, \quad \cos \vartheta = \vec{\epsilon}_1 \cdot \vec{\epsilon}_2$$

$\mathfrak{F}_1$ und $\mathfrak{F}_2$ sind Matrixelemente zwischen den Envelope-Funktionen von s- und p-Exziton und unterscheiden sich lediglich durch den Energieresonanznenner voneinander.

Zunächst erkennt man, daß der 2-Photonenabsorptionskoeffizient nur vom Winkel zwischen den Polarisationsvektoren $\vec{\epsilon}_1$ und $\vec{\epsilon}_2$ von Meß- und Laserlicht abhängt. Dieses Ergebnis ist in sehr guter Übereinstimmung mit den in Abb. 3 gezeigten Resultaten. Das Verhältnis zwischen größter und kleinster Absorptionskonstanten ist gegeben durch:

$$\frac{W(\vartheta=0^\circ)}{W(\vartheta=90^\circ)} = \frac{A}{B} = \frac{|\mathfrak{F}_1 + \mathfrak{F}_2|^2}{|\mathfrak{F}_1|^2 + |\mathfrak{F}_2|^2}$$

Dieses Verhältnis kann nur Werte zwischen 1 und 2 annehmen. Für RbJ liefert die Rechnung ein Verhältnis von 1.45, experimentell findet man 1.61. Auch hier ist die Übereinstimmung recht gut. Das Zweibandmodell ist also für die Beschreibung der 2-Photonenabsorption in RbJ und Alkalihalogeniden mit ähnlicher Bandstruktur gut geeignet und die bei der Berechnung vorgenommenen Vereinfachungen offensichtlich zulässig.

5.3 Die 2-Photonenspektren von CsJ und CsBr

Das 2-Photonenspektrum von CsJ läßt sich als Überlagerung zweier Beiträge interpretieren. Der eine Beitrag entspricht Band-Band-Übergängen mit einem Polarisationsverhältnis

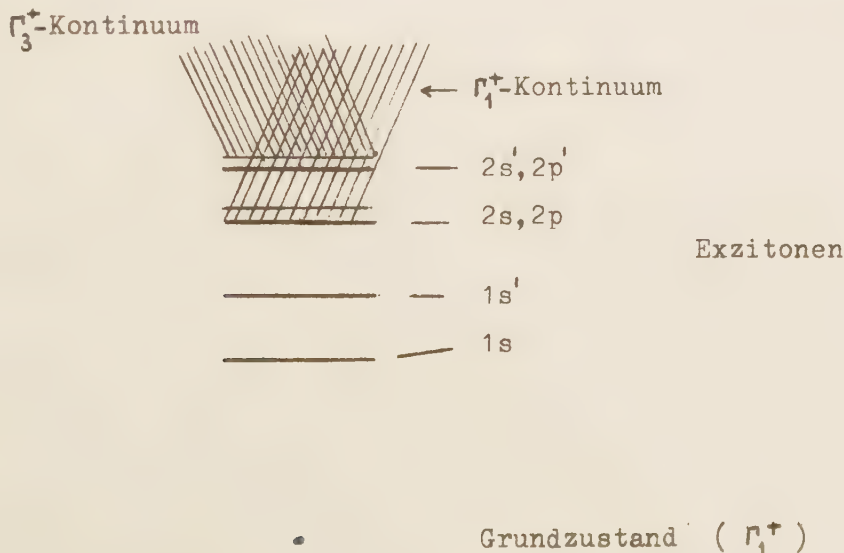
$$K_{2\text{phot}}(0^\circ, 0^\circ) : K_{2\text{phot}}(90^\circ, 0^\circ) \text{ von } 2.38.$$

Der zweite Beitrag wird einem Übergang zu einem Exziton zugeordnet, der auch das Minimum im Polarisationsverhältnis bei 6.250 eV hervorruft.

Der erste Teil ähnelt dem von Hopfield und Worlock⁽¹⁵⁾ mit unpolarisiertem Licht gemessenen Spektrum; es wird Übergängen zu p-Exzitonen bzw. Kontinuumszuständen am Γ -Punkt zugeordnet. Unter Berücksichtigung der Bandstruktur von CsJ⁽⁶⁾ sind folgende p-Exzitonen als Endzustände bei der 2-Photonenabsorption zu erwarten:

- 1.) ein p-Exziton, gebildet aus Loch im Γ_4^- -Valenz- und Elektron im Γ_1^+ -Leitungsband
und
- 2.) ein p-Exziton mit Loch im Γ_4^- -Valenz- und Elektron im Γ_1^+ -Leitungsband.

Im Exzitonenbild lassen sich diese Anregungszustände des Kristalls schematisch folgendermaßen wiedergeben:



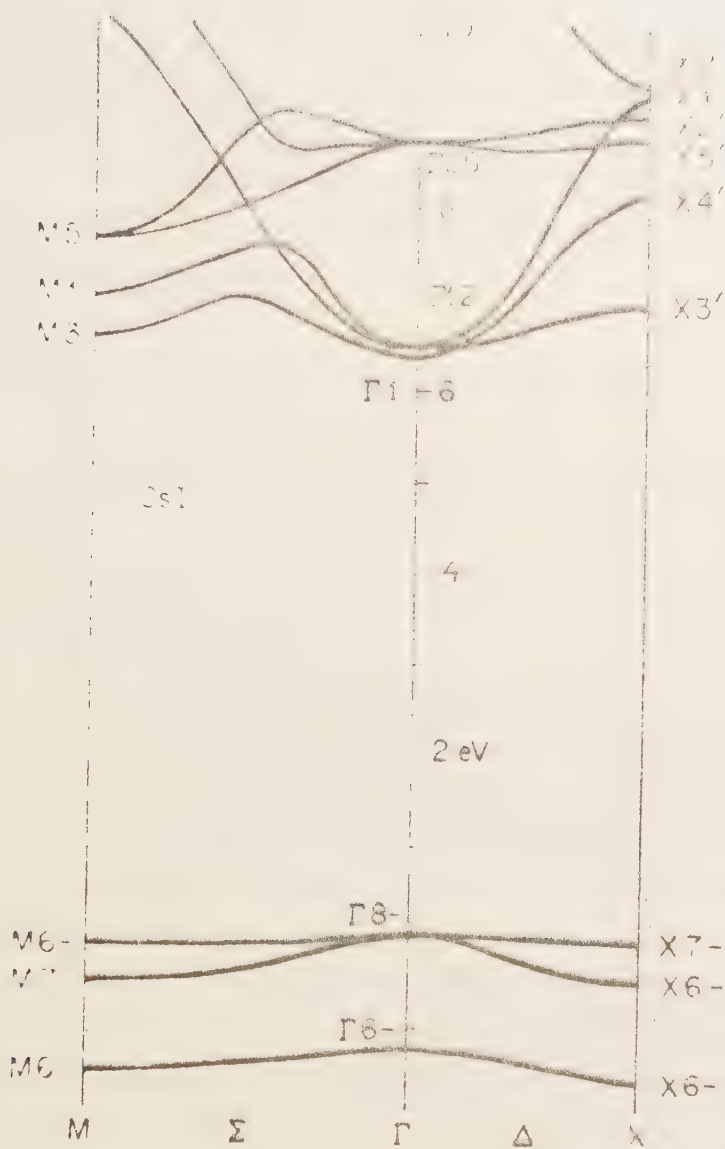


Abb. 9

Bandstruktur von CsI nach Onodera⁽⁶⁾

Die Existenz zweier energetisch dicht beieinander liegender Exzitonenserien ist die Folge zweier dicht beieinander liegender Leitungsbänder mit Γ_1^+ -Symmetrie (s-Leitungsband) und Γ_3^+ -Symmetrie (d-Leitungsband) in CsJ. Aus einem Loch im Γ_4^- -Valenzband und einem Elektron im Γ_1^+ -bzw. Γ_3^+ -Leitungsband lassen sich zwei verschiedene gebundene Zustände bilden, für deren Symmetrien dann gilt:

$$\Gamma_{\alpha}^p = \Gamma_1^+ \times \Gamma_4^- \times \Gamma_4^- = \Gamma_1^+ + \Gamma_3^+ + \Gamma_4^+ + \Gamma_5^+$$

$$\Gamma_{\alpha}^{p'} = \Gamma_3^+ \times \Gamma_4^- \times \Gamma_4^- = \Gamma_1^+ + \Gamma_2^+ + 2\Gamma_3^+ + 2\Gamma_4^+ + 2\Gamma_5^+$$

Von einem Γ_1^+ -Grundzustand sind also 2-Photonenübergänge zu diesen Endzuständen dipolerlaubt.

Das Einsetzen des 2-Photonenspektrums bei 6.050 eV entspricht dem Übergang zum 2p-Exziton, gebildet aus Lochzuständen im Γ_4^- -Valenzband und Elektronen im Γ_1^+ -Leitungsband, dem sich zu höheren Energien hin Übergänge in Kontinuumszustände anschließen. Der zweite Anstieg bei 6.300 eV entspricht einem Übergang zum 2p-Exziton, gebildet aus Loch im Γ_4^- -Valenzband und Elektron im Γ_1^+ -Leitungsband. Daran schließen sich wieder Übergänge in das Kontinuum an. Auch hier ist eine Auflösung der p-Exzitonen von den entsprechenden Band-Band-Übergängen wegen der kleinen Bindungsenergie nicht zu erwarten.

Eine Deutung der Meßergebnisse von CsJ mit dem bereits diskutierten Zweibandmodell ist nicht möglich. Zum einen sagt dieses Modell ein Polarisationsverhältnis $K_{2\text{Photon}}(0^\circ, 0^\circ) : K_{2\text{Photon}}(30^\circ, 0^\circ)$ zwischen 1 und 2 voraus; experimentell ergibt sich ein Wert von 2.38. Zum zweiten müßte dieses Polarisationsverhältnis unabhängig von der relativen Orientierung des Kristalls bezüglich der Polarisationsvektoren von Laser- und Blitzlampenlicht sein. Experimentell zeigt sich jedoch eine ausgeprägte Abhängigkeit des Polarisationsverhältnisses von der Orientierung des Kristalls bezüglich der Polarisationsvektoren.

Messungen mit einer Einstellung des Polarisationsvektors des Laserlichtes von 45° bezogen auf die $[010]$ -Achse des Kristalls liefern für das Verhältnis $K_{2\text{Phot}}(45^\circ, 45^\circ) : K_{2\text{Phot}}(135^\circ, 45^\circ)$ nur einen Wert von 1.40. Dieses Versagen des Zweibandmodells bei der Deutung der Ergebnisse ist von der Bandstruktur von CsJ her zu erwarten. Die wesentliche Voraussetzung bei der Ableitung des Zweibandmodells liegt in der Annahme, daß nur ein Valenz- und ein Leitungsband am 2-Photonenübergang beteiligt sind. Als Zwischenzustände werden dann lediglich die aus Loch und Elektron in diesen beiden Bändern gebildeten s-Exzitonen herangezogen. Diese Voraussetzung ist in CsJ wegen der beiden dicht beieinanderliegenden Leitungsbander nicht mehr erfüllt. Hier müssen zwei verschiedene Zwischenzustände berücksichtigt werden, nämlich s-Exzitonen, gebildet aus Lochzuständen im Valenzband und Elektronen in den beiden verschiedenen Leitungsbandern. Erst durch dieses im nächsten Kapitel diskutierte Dreibandmodell ist es möglich, die gemessene Polarisationsabhängigkeit befriedigend zu beschreiben.

Der zweite Teil des Spektrums besteht aus der bei 6.250 eV auftretenden Struktur des Absorptionsspektrums $K_{2\text{Phot}}(30^\circ, 0^\circ)$. Zur Analyse wird angenommen, daß das Polarisationsverhältnis, das aus den Übergängen am Γ -Punkt resultiert, 2.38 beträgt. Das Absorptionsspektrum, das dem Übergang zu einem gebundenen Zustand entspricht, ergibt sich dann als Differenz $K_{2\text{Phot}}(30^\circ, 0^\circ) - \frac{1}{2.38} K_{2\text{Phot}}(0^\circ, 0^\circ)$; in Abb. 10 ist das Resultat angegeben. Aus der Analyse der Polarisationsabhängigkeit dieses Spektrums ergibt sich bei Verwendung der Theorie von Inoue und Toyozawa eine Linearkombination von Γ_4^+ - und Γ_5^+ -Basiskunktionen. Unter Benutzung der Bandstruktur von CsJ nach Rechnungen von Onodera⁽⁶⁾ gibt es nur einen 2-Photonenübergang in diesem Energiebereich und mit dieser Winkelabhängigkeit, nämlich den $X_7^- \rightarrow X_3^-$ -Übergang. Deshalb wird diese Struktur bei 6.250 eV einem Exzitonenübergang am X-Punkt zugeordnet.

Die Oszillatorenstärke dieses X-Exzitons ist bei Temperaturen zwischen 5° K und 300° K gemessen worden. Mit steigender Temperatur nimmt die Oszillatorenstärke ab und verschwindet schließlich bei Zimmertemperatur. Zur Klärung dieses Verhaltens sind weitere

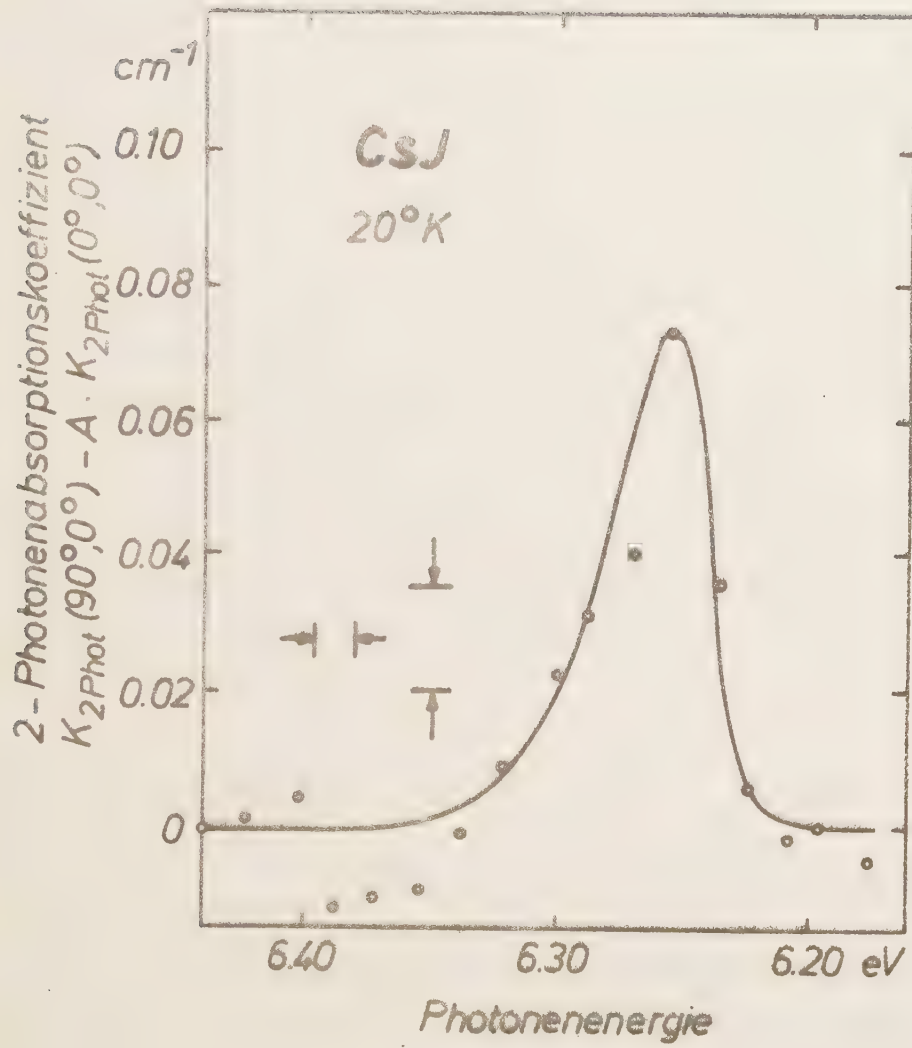


Abb. 10

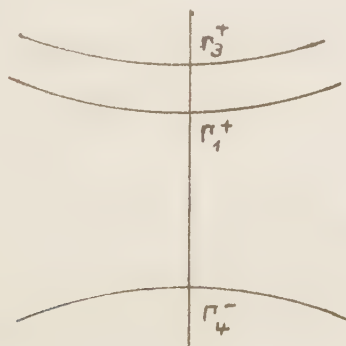
2-Photonenspektrum des X-Exzitons in CsJ

Untersuchungen der Linienform und der Halbwertsbreite als Funktion der Temperatur erforderlich.

Das Einsetzen der 2-Photonenabsorption in CsBr bei 7.180 eV wird, wie beim CsJ, einem Übergang zu einem 2p-Exziton zugeordnet, dem sich zu höheren Energien hin wieder Übergänge in Kontinuumszustände anschließen. Da die Bandstrukturen von CsBr und CsJ sehr ähnlich sind⁽⁶⁾, ist auch dieses Exziton aus Γ_4^- -Valenzband und Γ_1^+ -Leitungsband gebildet. Der zweite Anstieg des Spektrums bei 7.500 eV entspricht Übergängen zu einem Exziton, gebildet aus Γ_4^- -Valenz- und Γ_1^+ -Leitungsbandzuständen. In der Polarisationsabhängigkeit $K_{2phot}(0^\circ, 0^\circ): K_{2phot}(90^\circ, 0^\circ)$ von CsBr treten keine bemerkenswerten Strukturen auf. Allerdings ist auch hier eine, wenn auch schwache, Abhängigkeit dieses Verhältnisses von der Orientierung der Polarisationsvektoren bezüglich der Kristallachsen bemerkbar, die mit dem Zweibandmodell nicht erklärbar ist.

5.4 Das Dreibandmodell

Im folgenden sollen die Messungen an den Cs-Salzen mit Hilfe des Dreibandmodells interpretiert werden. In CsJ und auch in CsBr liegen zwei Leitungsbänder mit Γ_1^+ bzw. Γ_3^+ -Symmetrie relativ dicht benachbart. Schematisch läßt sich die zugrunde liegende Bandstruktur am Γ -Punkt folgendermaßen beschreiben:



Der Endzustand bei der 2-Photonenabsorption ist ein p-Exziton, gebildet aus Γ_4^- -Valenzband und Γ_1^+ -Leitungsband, dem sich zu höheren Energien hin Übergänge in Kontinuumszustände anschließen.

Ab 6.300 eV treten zusätzlich Übergänge zu einem zweiten p-Exziton auf, das aus Lochzuständen im Γ_4^- -Valenzband und Elektronen im Γ_3^+ -Leitungsband gebildet ist. Als Zwischenzustände können nun im Gegensatz zum Zweibandmodell zwei verschiedene 1s-Exzitonen benutzt werden, und zwar einmal ein 1s-Exziton, gebildet aus Γ_4^- -Valenzband und Γ_1^+ -Leitungsband und zum zweiten 1s-Exziton, gebildet aus Γ_4^- -Valenzband- und Γ_3^+ -Leitungsbandzuständen. Hier soll lediglich das Ergebnis der Rechnungen angegeben werden. Eine Ableitung dieser Resultate ist im Anhang (Kap. 7.2) gegeben. Für die Winkelabhängigkeit der 2-Photonenabsorptionskonstanten ergibt sich für dieses Dreibandmodell:

$$W(\vartheta) = A \cdot \cos^2 \vartheta + B \sin^2 \vartheta + C (e_1^2 e_2^2 + m_1^2 m_2^2 + \mu_1^2 \mu_2^2)$$

mit

$$A = (\mathfrak{F}_1 - \mathfrak{F}_1' + \mathfrak{F}_2 - \mathfrak{F}_2')^2$$

$$B = (\mathfrak{F}_1 - \mathfrak{F}_1')^2 + (\mathfrak{F}_2 - \mathfrak{F}_2')^2$$

$$C = 3(\mathfrak{F}_1' + \mathfrak{F}_2')^2 + 6(\mathfrak{F}_1' + \mathfrak{F}_2')(\mathfrak{F}_1 + \mathfrak{F}_2)$$

$$\cos \vartheta = \vec{\varepsilon}_1 \cdot \vec{\varepsilon}_2$$

$\vec{\varepsilon}_1, \vec{\varepsilon}_2$ -Polarisationsvektoren der
beiden Lichtquellen

$\mathfrak{F}_1, \mathfrak{F}_2$ sind Matrixelemente, die einen 2-Photonenübergang zu dem aus Γ_1^+ -Leitungsband und Γ_4^- -Valenzband gebildeten Endzustand beschreiben; der Zwischenzustand ist das 1s-Exziton zu den gleichen Bändern. Die gestrichenen Matrixelemente beschreiben einen 2-Photonenübergang zum gleichen Endzustand, allerdings mit einem 1s-Exziton als Zwischenzustand, das aus Loch im Γ_4^- -Valenzband und Elektron im Γ_3^+ -Leitungsband besteht. Sind die gestrichenen Matrixelemente $\mathfrak{F}_1'$ und $\mathfrak{F}_2'$ vernachlässigbar gegenüber $\mathfrak{F}_1$ und $\mathfrak{F}_2$, dann ergibt sich die vom Zweibandmodell vorausgesagte Winkelabhängigkeit. Die Größe C beschreibt die Abhängigkeit der 2-Photonenabsorptionskonstanten von der relativen

Orientierung von $\vec{e}_1$ und $\vec{e}_2$ zu den Kristallachsen. In der folgenden Tabelle sind für verschiedene Gesamtenergien die experimentellen und die berechneten Werte von CsJ für die Größen A, B und C gegenübergestellt. Für die Rechnung werden die im Anhang aufgeführten Größen benutzt. Die Koeffizienten A und C sind dabei auf B = 1 bezogen.

$(\hbar\omega_1 + \hbar\omega_2)$ eV	Experiment		Theorie			
	A	C	A	C	A*	C*
6.176	1.69 ± 0.05	0.77 ± 0.08	1.62	3.62	1.62	0.87
6.405	1.56 ± 0.04	0.85 ± 0.08	1.53	3.31	1.55	0.82
6.548	1.45 ± 0.04	0.83 ± 0.08	1.48	3.11	1.48	0.74

Die Theorie liefert recht gute Übereinstimmung für A. Größere Abweichungen zwischen Rechnung und Messung treten bei dem Koeffizienten C auf.

Wie aus der Rechnung hervorgeht, hängt die Größe C stark von dem Verhältnis der Nenner der ungestrichenen zu den gestrichenen Matrixelementen ab. Es gilt:

$$r = \frac{\langle 2p_z | p_z | 1s \rangle F_{1s}(0) \frac{m}{\mu} \langle s | p_z | z \rangle}{\langle 2p_z | p_z | 1s' \rangle F_{1s'}(0) M \langle u | p_z | z \rangle} \quad (5)$$

Eine Abschätzung im Rahmen der effektiven Massentheorie liefert unter Benutzung der Ergebnisse der Bandstrukturberechnungen für r einen Wert von 4.3. Für eine gute Übereinstimmung der Rechnung mit allen gemessenen Werten müßte $r = 12.2$ sein; A* und C* sind mit diesem angepassten Wert berechnet.

Da die Fehler bei der Abschätzung der Band-Band-Matrixelemente unter 20 % liegen⁽¹⁷⁾, sind die großen Abweichungen für r zwischen Rechnung und Experiment wahrscheinlich durch die ungenau

bekannten Radien des $1s$ - und $1s'$ -Exzitons bedingt. Das zeigt auch eine Abschätzung des Verhältnisses der Oszillatorenstärken dieser Exzitonen in der 1-Photonenabsorption, das durch das Verhältnis der Matrixelemente aus Gleichung (1) in Kap. 7.2 bestimmt ist. Es ergibt sich:

$$\frac{f(1s')}{f(1s)} = \frac{| \langle u | p_z | \Gamma_{4,2} \rangle |^2 | F_{1s}(0) |^2}{| \langle s | p_z | \Gamma_{4,2} \rangle |^2 | F_{1s}(0) |^2} = \frac{4.7}{11.3} \cdot 4.3 = 1.8$$

Nach dieser Abschätzung müßte die Intensität des $1s'$ -Exzitons in der 1-Photonenabsorption 1.8 mal so groß wie die des $1s$ -Exzitons sein. Nach Messungen von Teegarden und Baldini⁽¹⁴⁾ liegt dieses Verhältnis jedoch bei 1.5, nach Messungen von Fischer und Hilsch⁽¹⁸⁾ sogar unter 1. Daher ist zu vermuten, daß der tatsächliche Radius des $1s'$ -Exzitons größer ist, als der mit der effektiven Massentheorie berechnete. Gemäß Formel (5) würde sich damit auch für r ein größerer Wert ergeben.

Da die Abschätzung des Verhältnisses r für CsBr wegen der fehlenden Bandberechnungen noch problematischer ist, wird hier auf einen Vergleich zwischen Rechnung und Experiment verzichtet. Ein Versuch, dieses Verhältnis mit den gleichen effektiven Massen wie für CsJ zu berechnen, liefert zwar für den Koeffizienten A recht gute Übereinstimmung mit dem Experiment, jedoch ergibt sich für C ein Wert, der etwa um eine Zehnerpotenz zu groß ist.

Das Dreibandmodell in dieser Form vermag also qualitativ den experimentellen Sachverhalt zu beschreiben, ist aber bezüglich der quantitativen Übereinstimmung weniger befriedigend als das Zweibandmodell bei RbJ. Die Ursachen dafür liegen wohl darin, daß dieses Modell im Gegensatz zum Zweibandmodell die Berechnung verschiedener Matrixelemente erfordert, die sich nur sehr ungenau abschätzen lassen.

6. Zusammenfassung

Es wird der Aufbau eines 2-Photonenspektralphotometers beschrieben, mit dem 2-Photonenspektren vollautomatisch gemessen werden können. Der besondere Vorzug dieser Anlage im Vergleich zu dem bisher benutzten Meßverfahren liegt in der Verwendung von Analog-Digital-Konvertern, die die Impulshöhen der die 2-Photonenabsorptionskonstante bestimmenden Signale registrieren. Das Auflösungsvermögen beträgt im gemessenen Spektralbereich von 2100 Å bis 3000 Å etwa 5 Å. Die Meßgeschwindigkeit ist durch die Impulsfolgefrequenz des verwendeten Riesenimpuls lasers beschränkt, die bei maximal 2 Impulsen pro Minute liegt.

Mit diesem Spektralphotometer werden erstmalig 2-Photonenabsorptionsmessungen mit polarisiertem Licht an RbJ, CsJ und CsBr durchgeführt. Aus der unterschiedlichen Bandstruktur dieser Kristalle resultieren 2-Photonenspektren, die sich in charakteristischer Weise unterscheiden. Diese Spektren werden interpretiert als Übergänge zu p-Exzitonen am Γ -Punkt, denen sich zu höheren Energien hin Übergänge in Kontinuumszustände anschließen. Aus dem Einsetzen der 2-Photonenabsorption lassen sich genaue Werte für die Bandkanten der entsprechenden Substanzen bestimmen. In CsJ liefern die Messungen eine ausgeprägte Struktur im 2-Photonenspektrum, die als Übergang zu einem Exziton gerader Parität am X-Punkt gedeutet wird. Messungen der Polarisationsabhängigkeit der 2-Photonenabsorptionskonstanten werden mit Ergebnissen von Modellrechnungen verglichen. Es zeigt sich, daß das Zweibandmodell in guter Übereinstimmung die Ergebnisse von RbJ beschreibt. Die Messungen an CsJ und CsBr lassen sich mit diesem Modell nicht befriedigend deuten. Erst ein Dreibandmodell ist in qualitativer Übereinstimmung mit den Meßresultaten.

7. Anhang

In den beiden folgenden Kapiteln wird ausführlicher die Theorie des Zwei- und Dreibandmodells entwickelt. Im Vordergrund steht dabei die Ableitung der Polarisationsabhängigkeit der Absorptionskonstanten für diese beiden Modelle.

Im dritten Kapitel werden die Funktionen der wichtigsten elektronischen Einheiten des Spektralphotometers erläutert, Schaltpläne angegeben und einige Oszillogramme der wichtigsten dabei auftretenden Impulse gezeigt.

7.1 Theorie des Zweibandmodells

Für die Absorptionskonstante gilt nach Formel (1):

$$K_{\text{Zweiband}} = \left| \sum_{e'} \frac{\langle f | \vec{e}_1 \vec{p} | e' \rangle \langle e' | \vec{e}_1 \vec{p} | i \rangle}{\hbar (\omega_{e'i} - \omega_1)} + \sum_{e'} \frac{\langle f | \vec{e}_2 \vec{p} | e' \rangle \langle e' | \vec{e}_2 \vec{p} | i \rangle}{\hbar (\omega_{e'i} - \omega_2)} \right|^2 \quad (1)$$

Zwischenzustand ist das s-Exziton, gebildet aus Γ_4^- -Valenzband und Γ_1^+ -Leitungsband. Endzustand ist in diesem Modell das 2p-Exziton zu den gleichen Bändern. Die Summation über e' wird damit zur Summation über alle möglichen Anregungszustände des s-Exzitons. Das erste Matrixelement, das den Übergang vom Grundzustand zum Zwischenzustand beschreibt, wird nach Elliott⁽¹⁶⁾:

$$\langle e' | \vec{e}_\alpha \vec{p} | i \rangle = \sqrt{V} \psi_\lambda^*(0) \langle c | \vec{e}_\alpha \vec{p} | v \rangle \quad (2)$$

$|c\rangle$ - Blochfunktion des Γ_1^+ -Leitungsbandes

$|v\rangle$ - Blochfunktion des Γ_4^- -Valenzbandes

$\psi_\lambda(0)$ - Wasserstofffunktion der Relativbewegung

von Loch und Elektron an der Stelle $r = 0$

$\lambda = 1, 2, \dots, n$

V - Normierungsvolumen

$\alpha = 1, 2$

Das Matrixelement, das den Übergang vom Zwischen- zum Endzustand beschreibt, reduziert sich zu einem Matrixelement zwischen zwei

Wasserstofffunktionen:

$$\langle f | \vec{e}_\beta \vec{p} | e \rangle = \frac{m}{\mu} \int d^3r \psi_{\delta}^*(r) \vec{e}_\beta \vec{p} \psi_{\lambda}(r) \quad \beta = 1, 2 \quad (3)$$

μ ist hierbei die reduzierte Masse des Exzitons. δ repräsentiert den Satz der Quantenzahlen (n, l, m) für den gebundenen Endzustand.

Für die Summe über die Zwischenzustände wird folgender Ausdruck eingeführt:

$$I_{\delta}(\alpha, \beta) = \int d^3r \psi_{\delta}^*(r) \vec{e}_\beta \vec{p} \sum_{\lambda} \frac{\psi_{\lambda}(r) \psi_{\lambda}^*(0)}{E_{\lambda,0} + E_G - \hbar\omega_{\alpha}} \quad (4)$$

Dabei ist $E_{\lambda,0}$ die von der Leitungsbandkante aus gemessene Bindungsenergie des Exzitons. Unter Verwendung dieses Ausdrucks ergibt sich für die Absorptionskonstante:

$$K_{2Phot} \sim \left| \langle c | \vec{e}_1 \vec{p} | v \rangle I_{\delta}(1,2) + \langle c | \vec{e}_2 \vec{p} | v \rangle I_{\delta}(2,1) \right|^2 \quad (5)$$

Für die Berechnung der Energieabhängigkeit wird nun (4) weiter umgeformt und numerisch berechnet⁽⁵⁾.

Die Polarisationsabhängigkeit der Absorptionskonstanten läßt sich aus (5) folgendermaßen gewinnen: In Substanzen kubischer Symmetrie existiert ein nicht verschwindendes Matrixelement $\langle c | \vec{p} | v \rangle$ nur dann, wenn das direkte Produkt der Symmetrien der Blochfunktionen von Valenz- und Leitungsband die Γ_4^- -Darstellung enthält. Die gleiche Auswahlregel gilt für (3). Der Endzustand ist also aus Blochfunktionen und Wasserstofffunktionen zusammengesetzt, die sich wie Γ_4^- transformieren. Zerlegt man nun diese Funktionen in Basisfunktionen von Γ_4^- , d. h. in Funktionen, die sich wie x, y oder z transformieren, so läßt sich die Übergangswahrscheinlichkeit in folgender Form angeben:

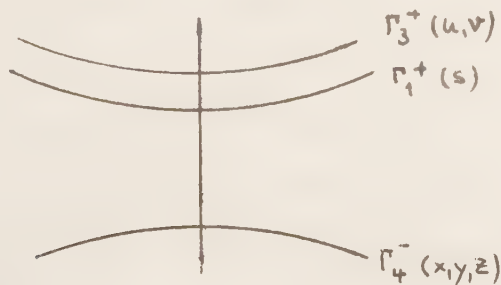
$$K_{2Phot} \sim \sum_{i,j=x,y,z} \left| \langle c | e_{1i} p_i | v \rangle I_{\delta_j}(1,2) + \langle c | e_{2i} p_i | v \rangle I_{\delta_j}(2,1) \right|^2 \quad (6)$$

Führt man diese Summation aus, so ergibt sich für die 2-Photonenabsorptionskonstante:

$$K_{2\text{Photon}} \sim \left| I_{\delta}(1,2) + \bar{I}_{\delta}(2,1) \right|^2 \cos^2 \vartheta + \left(\left| I_{\delta}(1,2) \right|^2 + \left| \bar{I}_{\delta}(2,1) \right|^2 \right) \sin^2 \vartheta \quad (7)$$

7.2 Theorie des Dreibandmodells

Für die Berechnung wird folgende Bandstruktur vorausgesetzt:



Das Γ_3^+ -Band (d-Band) ist zweifach entartet; die Blochfunktionen u und v transformieren sich gemäß $3z^2 - r^2$ und $\sqrt{3}(x^2 - y^2)$. Der bei der 2-Photonenabsorption erreichte Endzustand ist ein Exziton mit Elektron im Γ_1^+ -Leitungsband und Loch im Γ_4^- -Valenzband mit einer p-ähnlichen Relativbewegung. Die Wellenfunktion dieses Zustandes ist durch

$$|p\gamma, \delta\rangle = \sum_{\mathbf{k}} A(\delta\mathbf{k}, s\mathbf{k}) \left[\sum_{\beta} F_{p\gamma}(\beta) e^{-i\mathbf{k}\beta} \right]$$

gegeben. A ist dabei die entsprechende Slaterdeterminante und F die p-Envelope-Funktion. Der Index γ gibt die Symmetrie der p-Envelope an (x, y, z) und δ das Symmetrieverhalten des Valenzbandes, aus dem das angeregte Elektron herrührt. Als Zwischenzustände können zwei 1s-Exzitonen wirken, einmal das aus Loch im Γ_4^- -Valenzband und Elektron im Γ_1^+ -Leitungsband gebildete Exziton mit der Wellenfunktion

$$|1s, \delta\rangle = \sum_{\mathbf{k}} A(\delta\mathbf{k}, s\mathbf{k}) \left[\sum_{\beta} F_{1s}(\beta) e^{-i\mathbf{k}\beta} \right]$$

und zum zweiten ein 1s-Exziton, bestehend aus Loch im Γ_4^- -Valenzband und Elektron im Γ_3^+ -Leitungsband mit der Wellenfunktion

$$|1s, \delta\rangle = \sum_{\mathbf{k}} A(\delta \mathbf{k}, u_{\delta} \mathbf{k}) \left[\sum_{\beta} F_{1s}(\beta) e^{-i\mathbf{k}\beta} \right]$$

Zur Unterscheidung wird dieses Exziton im folgenden mit 1s' bezeichnet. Die Blochfunktionen u_{δ} des entarteten Γ_3^+ -Bandes sind gegeben durch

$$u_x = -\frac{1}{2}u + \frac{\sqrt{3}}{2}v, \quad u_y = -\frac{1}{2}u - \frac{\sqrt{3}}{2}v, \quad u_z = u$$

mit einem Transformationsverhalten gemäß $2x^2 - y^2 - z^2$, $2y^2 - x^2 - z^2$ und $2z^2 - x^2 - y^2$. Für den Übergang vom Grund- zum Zwischenzustand ergeben sich folgende Matrixelemente ⁽¹⁶⁾:

$$\begin{aligned} \langle 1s, \delta | \vec{\epsilon}_\alpha \vec{p} | \text{Grundzustand} \rangle &= \langle s | \vec{\epsilon}_\alpha \vec{p} | \delta \rangle F_{1s}(0) \\ \langle 1s', \delta | \vec{\epsilon}_\alpha \vec{p} | \text{Grundzustand} \rangle &= \langle u_\delta | \vec{\epsilon}_\alpha \vec{p} | \delta \rangle F_{1s'}(0) \end{aligned} \quad (1)$$

Die dabei auf der rechten Seite auftretenden Matrixelemente beschreiben Übergänge zwischen Γ_4^- -Valenz- und Γ_4^+ -bzw. Γ_3^+ -Leitungsband. Der Übergang vom 1s-Exziton zum p-Exziton, das unter Beteiligung des gleichen Leitungs- und Valenzbandes gebildet ist, wird durch folgendes Matrixelement beschrieben ⁽⁵⁾:

$$\langle p\gamma, \delta | \vec{\epsilon}_\beta \vec{p} | 1s, \delta \rangle = \vec{\epsilon}_\beta \langle p\gamma | \vec{p} | 1s \rangle \frac{m}{\mu} \quad (2)$$

$\langle p\gamma | \vec{p} | 1s \rangle$ ist dabei ein Matrixelement zwischen einer s- und einer p-Envelope. Der entsprechende Übergang vom 1s'-Exziton zum p-Exziton wird folgendermaßen beschrieben:

$$\langle p\gamma, \delta | \vec{\epsilon}_\beta \vec{p} | 1s', \delta \rangle = \vec{\epsilon}_\beta M^{(\delta)} \langle p\gamma | \vec{p} | 1s' \rangle \quad (3)$$

wobei der Tensor $M^{(\delta)}$ durch den folgenden Ausdruck gegeben ist:

$$M_{\nu}^{(d)} = \frac{1}{\mu} \sum_j \frac{\langle s | p_{\nu} | j \rangle \langle j | p_{\nu} | u \delta \rangle}{E(\Gamma_3) - E_j} + \frac{1}{\mu} \sum_j \frac{\langle s | p_{\nu} | j \rangle \langle j | p_{\nu} | u \delta \rangle}{E(\Gamma_1) - E_j}$$

Dieser Tensor läßt sich folgendermaßen umformen:

$$M^{(d)} = T^{(d)} \cdot M \quad \text{mit}$$

$$M = \frac{1}{2\mu\hbar} \sum_{\Gamma_4} \langle s | p_{\pm} | \Gamma_4, z \rangle \langle \Gamma_4, z | p_{\pm} | u \rangle \left\{ \frac{1}{E(\Gamma_3) - E(\Gamma_4)} + \frac{1}{E(\Gamma_1) - E(\Gamma_4)} \right\}$$

und

$$T^{(x)} = \begin{pmatrix} 2 & -1 & \\ & -1 & \\ & & -1 \end{pmatrix}, \quad T^{(y)} = \begin{pmatrix} -1 & & \\ & 2 & \\ & & -1 \end{pmatrix}, \quad T^{(z)} = \begin{pmatrix} -1 & & \\ & -1 & \\ & & 2 \end{pmatrix}$$

Die Anisotropie dieses Tensors ist eine Folge der Symmetrie der Blochfunktionen des Γ_3^+ -Leitungsbandes und bewirkt die im Gegensatz zum Zweibandmodell kompliziertere Winkelabhängigkeit. Unter Benutzung der Ausdrücke (1), (2) und (3) ergibt sich dann für die 2-Photonenabsorptionswahrscheinlichkeit $u(x, \delta)$:

$$u(x, \delta) = \mathcal{F}_2 \epsilon_{1x} \epsilon_{2\delta} + \mathcal{F}_1 \epsilon_{2x} \epsilon_{1\delta} + \mathcal{F}_2' \vec{\epsilon}_1 \cdot \vec{T}_x^{(d)} \epsilon_{2\delta} + \mathcal{F}_1' \vec{\epsilon}_2 \cdot \vec{T}_x^{(d)} \epsilon_{1\delta}$$

Dabei sind $\mathcal{F}_d$ und $\mathcal{F}_d'$ gegeben durch:

$$\mathcal{F}_d = \frac{\langle 2p_{\pm} | p_{\pm} | 1s \rangle \frac{m}{\mu} F_{1s}(0) \langle s | p_{\pm} | z \rangle}{E_{1s} - \hbar\omega_d} \quad d=1,2$$

$$\mathcal{F}_d' = \frac{\langle 2p_{\pm} | p_{\pm} | 1s' \rangle \hbar F_{1s'}(0) \langle u | p_{\pm} | z \rangle}{E_{1s'} - \hbar\omega_d}$$

Für die Winkelabhängigkeit der 2-Photonenabsorptionskonstanten ergibt sich dann

$$W = \sum_{d, \delta} |u(x, \delta)|^2 = A \cdot \cos^2 \vartheta + B \cdot \sin^2 \vartheta + C (e_1^2 e_2^2 + m_1^2 m_2^2 + m_1^2 u_2^2)$$

mit

$$A = (\mathcal{F}_1 - \mathcal{F}_1' + \mathcal{F}_2 - \mathcal{F}_2')^2$$

$$B = (\mathcal{F}_1 - \mathcal{F}_1')^2 + (\mathcal{F}_2 - \mathcal{F}_2')^2$$

$$C = 3(\mathcal{F}_1' + \mathcal{F}_2')^2 + 6(\mathcal{F}_1' + \mathcal{F}_2')(\mathcal{F}_1 + \mathcal{F}_2)$$

Zur Angabe einer Winkelabhängigkeit müssen die Größen $\mathcal{F}_2$ und $\mathcal{F}_2'$ bekannt sein. Die die Enveloppe bestimmenden Größen können aus den berechneten Werten der effektiven Massen hergeleitet werden. Für die effektiven Massen werden Werte von 0.35 und 0.57 für das 1s- bzw. 1s'-Exziton benutzt⁽¹⁷⁾. Die Dielektrizitätskonstante geht nicht in die Rechnung ein, da nur das Verhältnis $\mathcal{F}_2/\mathcal{F}_2'$ für die Berechnung erforderlich ist. Die Matrixelemente für die Band-Band-Übergänge werden nach der effektiven Massentheorie folgendermaßen berechnet:

$$\frac{m_e}{m^*} = 1 + \frac{2}{m_e} \sum_{\Gamma_4} \frac{|\langle s | p_z | \Gamma_4 z \rangle|^2}{E(\Gamma_3) - E(\Gamma_4)}, \quad \frac{m_e}{m^*} = 1 + \frac{2}{m_e} \sum_{\Gamma_4} \frac{|\langle u | p_z | \Gamma_4 z \rangle|^2}{E(\Gamma_3) - E(\Gamma_4)}$$

Benutzt man von allen möglichen Γ_4^- -Zuständen nur das oberste Valenzband, so ergibt sich mit den berechneten Werten der effektiven Massen:

$$\frac{2}{m_e} |\langle s | p_z | z \rangle|^2 = 11.3 \text{ eV}, \quad \frac{2}{m_e} |\langle u | p_z | z \rangle|^2 = 4.7 \text{ eV}$$

Sind die Interbandmatrixelemente berechnet, so ergibt sich damit für M ein Wert von 0.59. Unter Benutzung dieser berechneten Größen und den Exzitonenergien $E_{1s} = 5.81 \text{ eV}$ und $E_{1s'} = 6.00 \text{ eV}$ für CsJ ergeben sich die in Kapitel 5.4 angegebenen Koeffizienten A und C.

7.2 Schaltpläne und Beschreibungen zum elektronischen Teil des Spektralphotometers

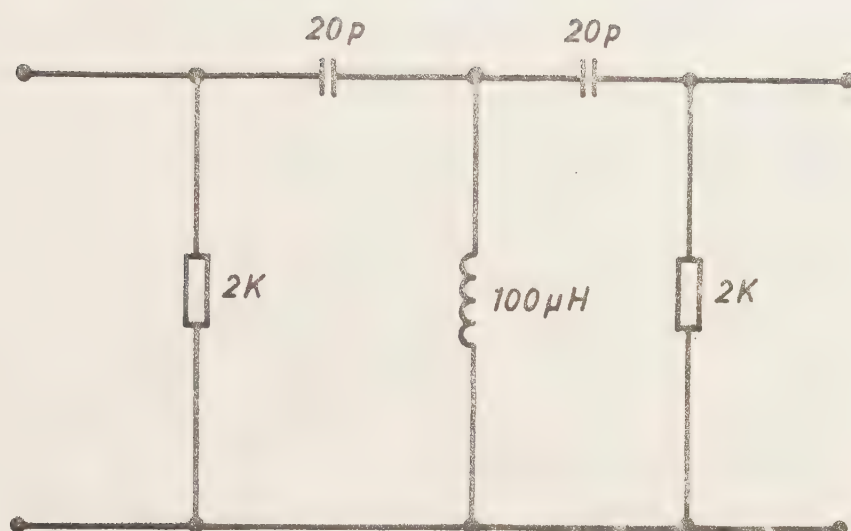
Im folgenden werden die wichtigsten elektronischen Einheiten des Spektralphotometers beschrieben. Alle Oszillogramme sind mit dem Oszillographen Tektronix 547 A aufgenommen. Die Eingangsimpedanz beträgt 50 Ohm.

a) Der Hochpass

In Abb. 11 ist die Schaltung des L-C-Hochpasses wiedergegeben, der direkt mit der Anode des Photomultipliers verbunden ist. Die elektrischen Größen von Spule und Kondensatoren sind dabei so gewählt, daß das langsame f_0 -Signal (ca. 5 μ sec Halbwertsbreite) gegenüber dem schnellen Δf -Signal (ca. 20 nsec Halbwertsbreite) völlig unterdrückt wird. Oszillogramm (1) (0.1 μ sec/cm, 0.5 V/cm) zeigt ein typisches 2-Photonensignal nach Durchlaufen des Hochpasses. Die nachfolgenden Oszillationen sind Eigenschwingungen des L-C-Kreises und werden vor der Weiterverarbeitung des 2-Photonensignals durch ein Gate abgetrennt. Oszillogramm (2) zeigt das 2-Photonensignal nach Durchlaufen des Gates.

b) Impulsformer 1 (Abb. 12)

Diese elektronische Einheit verarbeitet die Impulse einer Triggerdiode (SGD 100) zu negativen Einheitsimpulsen einer Amplitude von ca. 0.4 Volt und einer Halbwertsbreite von 60 nsec. Oszillogramm (3) zeigt diesen Ausgangsimpuls (20 nsec/cm, 0.1 V/cm), der zum Öffnen des linearen Tores benutzt wird. Die Flankensteilheit des Impulses, die wegen der Eigenanstiegszeit des Oszillographen unrichtig wiedergegeben wird, liegt bei ca. 2 nsec und wird durch die Verwendung von Step-Recovery-Dioden (HP 82 202) erreicht. Zur zeitlich richtigen Triggerung des Gates durchläuft dieses Ausgangssignal eine Verzögerungsleitung.



Hochpass

Abb. 11

L-C-Hochpass.

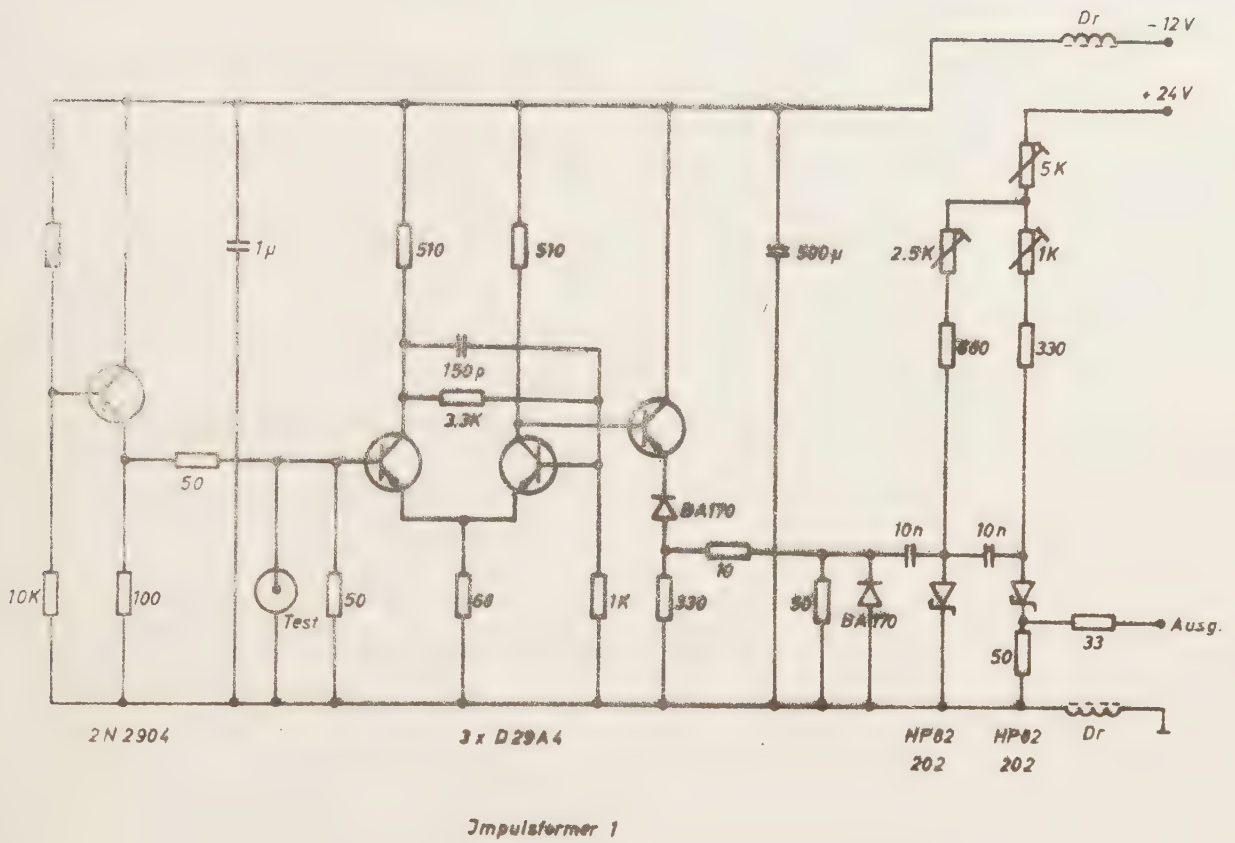
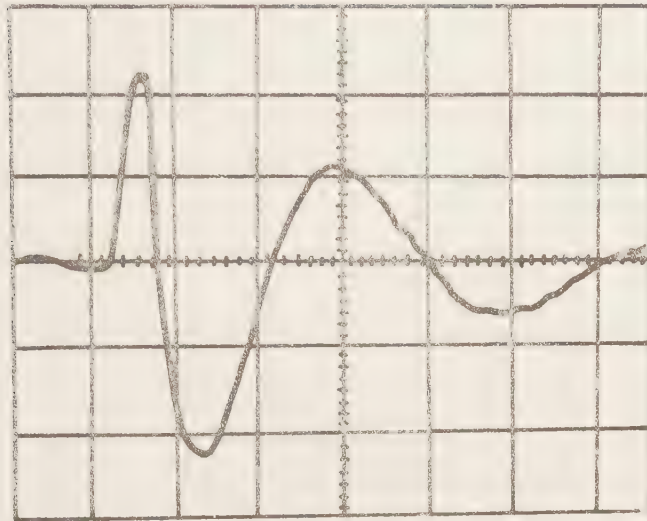
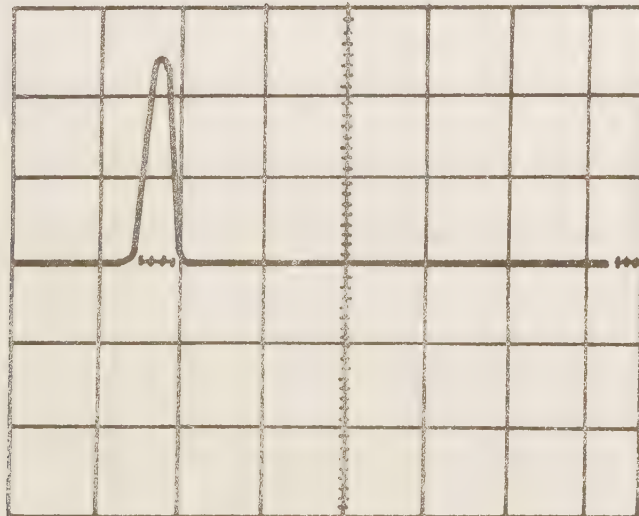


Abb. 12

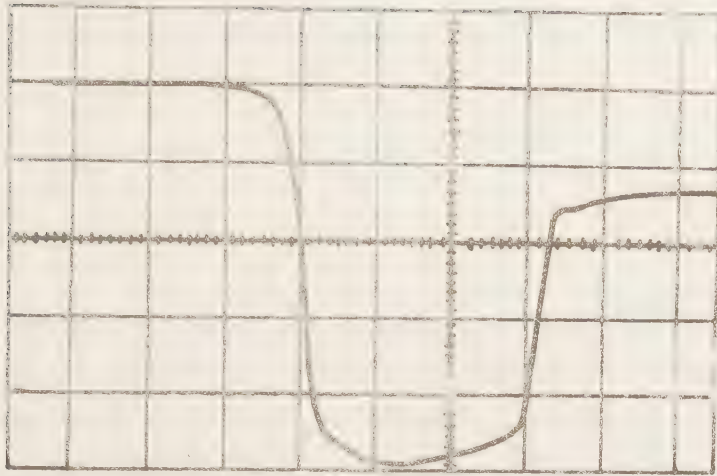
Impulsformer 1



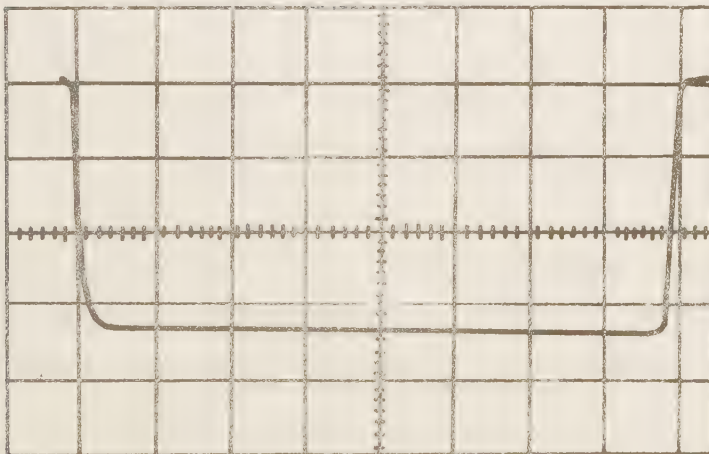
Oszillogramm (1) (0.1 μ sec/cm, 0.5 V/cm)



Oszillogramm (2)



Oszillogramm (3) (20 nsec/cm, 0.1 V/cm)



Oszillogramm (4) (0.1 μ sec/cm, 2 V/cm)

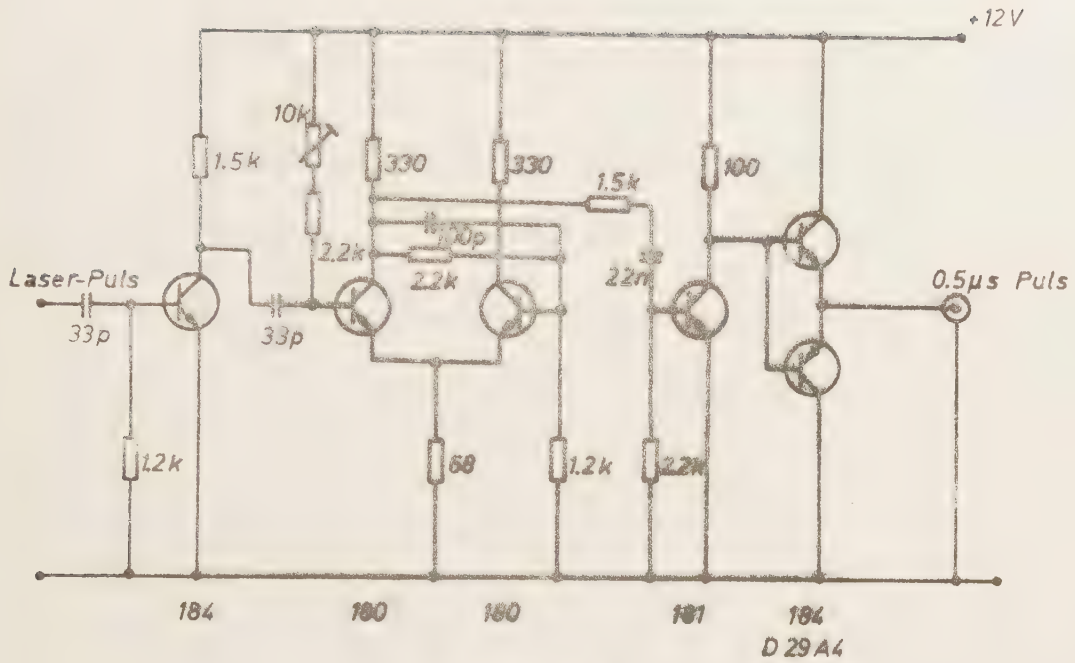
Zur Überprüfung dieser Stufe ist ein Eingang (Test) zum Anschluß eines Impulsgenerators vorgesehen; es werden Eingangsimpulse negativer Polarität benötigt (Halbwertsbreite ca. 0.5 μ sec, Höhe ca. 4 Volt). Der dabei an Punkt A auftretende Impuls ist in Oszillogramm (4) wiedergegeben (0.1 μ sec/cm, 2 V/cm).

c) Impulsformer 2 (Abb. 13)

Diese Impulsformerstufe liefert die Triggerimpulse für die Oszillographen und die ADC's. Der Eingangsimpuls, wiederum von einer Triggerdiode (SGD 100) geliefert, löst einen monostabilen Univibrator aus. Im Oszillogramm (5) ist dieser negative Ausgangsimpuls wiedergegeben (0.2 μ sec/cm, 2 V/cm). Ohne Signal liegt am Ausgang eine Spannung von ca. +10 Volt.

d) Der Verzögerer

Die in Abb. 14 wiedergegebene Einheit verzögert Eingangsimpulse beliebiger Polarität einstellbar von etwa 0.8 μ sec bis 5 msec. Die Ansprechempfindlichkeit ist einstellbar (Level). Der mit Slope bezeichnete Schalter gestattet, den Anstieg oder den Abfall des Eingangsimpulses zum Triggern zu verwenden. Der Ausgangsimpuls ist positiv. Hier wird mit dieser Stufe das vom Laser gelieferte Signal zum Zünden der Blitzlampe so verzögert, daß die Emission des Lasers zeitlich mit dem Maximum der Blitzlampenintensität zusammenfällt. In Abb. 15 ist die Schaltung des dazugehörigen, geregelten Stromversorgungsteiles wiedergegeben.

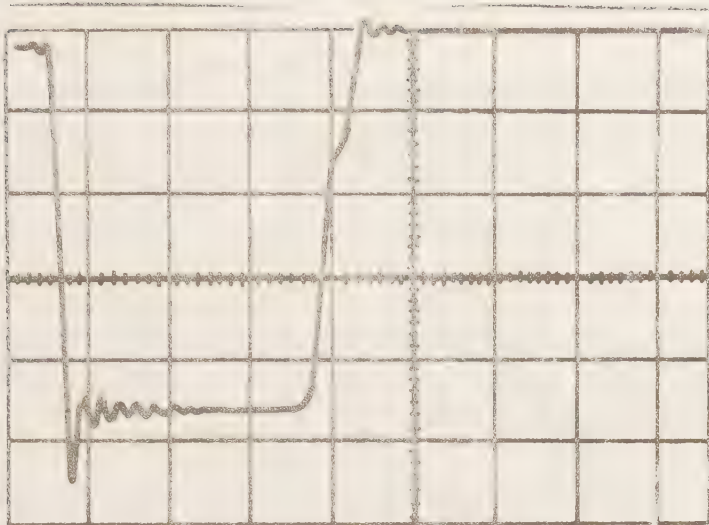


Impulsformer 2

10.5.69 Vo

Abb. 13

Impulsformer 2



Oszillogramm (5) ($0.2 \mu\text{sec/cm}$, 2 V/cm)

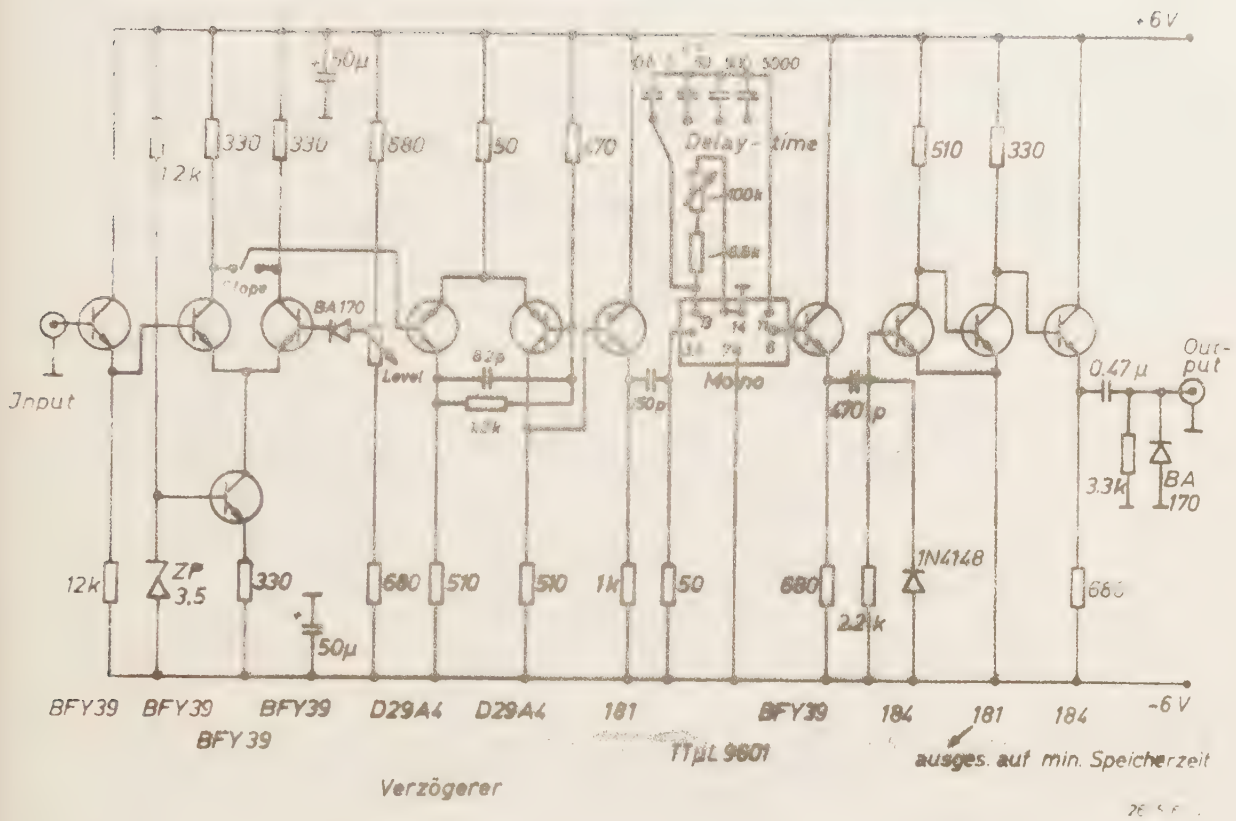
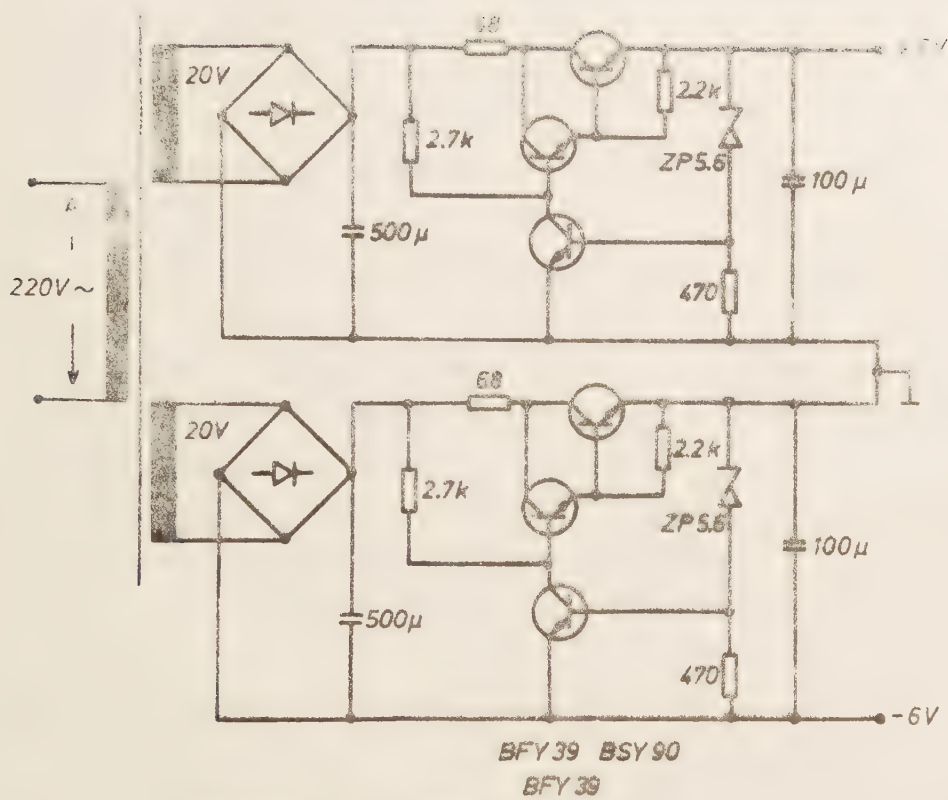


Abb. 14
Verzögerer



Netzgerät für Verzögerer

10.5.69 Vo.

Abb. 15

Netzteil zum Verzögerer

8. Literaturverzeichnis

- 1) J. J. Hopfield, J. M. Worlock, and K. Park, Phys. Rev. Letters 11, 414 (1963)
- 2) S. P. S. Porto, P. A. Fleury and T. C. Damen, Phys. Rev. 154, 522 (1967)
R. Loudon, Adv. in Phys. 13, 423 (1964)
- 3) D. Fröhlich and B. Stagginnus, Phys. Rev. Letters 19, 496 (1967)
D. Fröhlich and B. Stagginnus, Phys. Letters 28A, 738 (1969)
- 4) S. Oyama and T. Miyakawa, J. Phys. Soc. Japan 21, 868 (1966)
Y. Onodera, M. Okazaki and T. Inui, J. Phys. Soc. Japan 21, 2229 (1966)
P. D. Cicco, Phys. Rev. 153, 931 (1967)
A. B. Kunz, Phys. Rev. 175, 1147 (1968)
Phys. Letters 27A, 401 (1968)
- 5) G. D. Mahan, Phys. Rev. 170, 825 (1968)
- 6) Y. Onodera, J. Phys. Soc. Japan 25, 469 (1968)
U. Rössler, phys. stat. sol. 34, 207 (1969)
- 7) B. Stagginnus, D. Fröhlich and T. Caps, Rev. Sci. Instr. 39, 1129 (1968)
- 8) Maria Goeppert-Mayer, Ann. Physik 9, 273 (1931)
- 9) W. L. Peticolas, Ann. Rev. Phys. Chem. 18, 233 (1967)
A. Gold and J. P. Hernandez, Phys. Rev. 139, A 2002 (1965)
- 10) D. Fröhlich, Habilitationsschrift, Frankfurt am Main 1968
- 11) L. M. Falicov, Group Theory and its Physical Applications (Chicago Press, Chicago, 1966)

- 12) M. Inoue and Y. Toyozawa, J. Phys. Soc. Japan 20, 363
(1965)
Todd R. Bader and Alberd Gold, Phys. Rev. 171, 997 (1968)
- 13) K. Mayer, to be published in J. Crystal Growth
- 14) K. Teegarden and G. Baldini, Phys. Rev. 155, 896 (1967)
- 15) J. J. Hopfield and J. M. Worlock, Phys. Rev. 137, A 1455
(1965)
- 16) R. J. Elliott, Phys. Rev. 108, 1384 (1957)
- 17) Y. Onodera, private Mitteilung
- 18) F. Fischer und R. Hilsch, Nachr. Akad. Wiss. Göttingen
II a, 241 (1959)

Herrn Prof. Dr. W. Martienssen danke ich für die freundliche Aufnahme in das Institut und für das stete Interesse and dem Fortgang der Arbeit.

Herrn Priv. Doz. Dr. D. Fröhlich, von dem die Anregung zu dieser Arbeit ausging, danke ich aufs herzlichste für die vorzügliche Anleitung und Förderung.

Herrn Dr. D. Fröhlich, Herrn Dr. H. Büttner und Herrn Dr. Y. Onodera möchte ich für die zahlreichen Diskussionen bei der Deutung der Ergebnisse danken.

Herrn Vogel möchte ich für die ausgezeichnete Lösung der vielen elektronischen Probleme beim Aufbau des Spektralphotometers danken.

Ferner gilt mein Dank allen anderen Institutsmitgliedern für stete Diskussionsbereitschaft und Unterstützung.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft danke ich für die großzügige Finanzierung der verwendeten Apparaturen.

Meine akademischen Lehrer waren die Herren Professoren
Dr. Bauer, Behrens, Dänzer, Franz, Greiner, Martienssen,
Mrowka, Müser, Royen, Schopper und Süßmann.

Lebenslauf

Am 18. Februar 1942 wurde ich, Bernd Staginnus, als Sohn des Verwaltungsinspektors Fritz Staginnus und dessen Ehefrau Lisbeth, geb. Lockau, in Insterburg/Ostpreußen geboren. Im Jahre 1944 flohen wir aus Ostpreußen nach Erfurt/Thüringen. Dort begann ich im Herbst 1948 mit dem Besuch der Grundschule. Im Juli 1950 veranlaßten politische Gründe meine Eltern die sowjetisch besetzte Zone zu verlassen. Hessen wurde unser Aufnahmeland. Zunächst setzte ich in Hofheim bei Worms den unterbrochenen Schulbesuch fort. Im September 1950 zogen wir nach Hanau/Main. Hier besuchte ich die Bezirksschule III. Ostern 1952 bestand ich die Aufnahmeprüfung für die Sexta der Hohen Landesschule. Hier legte ich am 10. März 1961 die Reifeprüfung ab. Am 18. April 1961 begann ich mein Physik-Studium an der Johann Wolfgang Goethe-Universität in Frankfurt am Main. Im September 1963 legte ich die Diplom-Vorprüfung ab. Im Institut für Kernphysik untersuchte ich unter der Leitung des Herrn Dr. R. Bass im Rahmen meiner Diplomarbeit die Reaktionen $\text{Na}^{23} (n, p) \text{Ne}^{23}$ und $\text{Na}^{23} (n, \alpha) \text{F}^{20}$. Seit meiner Diplom-Hauptprüfung im November 1966 arbeite ich im Physikalischen Institut auf dem Gebiet der 2-Photonenspektroskopie.

